

PATENT COOPERATION TREATY

9/926323

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and
Administrative Instructions, Section 422)

Date of mailing (day/month/year) 23 October 2001 (23.10.01)	
Applicant's or agent's file reference 19116P WO	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/EP00/03347	International filing date (day/month/year) 13 April 2000 (13.04.00)

1. The following indications appeared on record concerning:

the applicant the inventor the agent the common representative

Name and Address WILEX BIOTECHNOLOGY GMBH Grillparzerstrasse 10B D-81675 München Germany	State of Nationality DE	State of Residence DE
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:

the person the name the address the nationality the residence

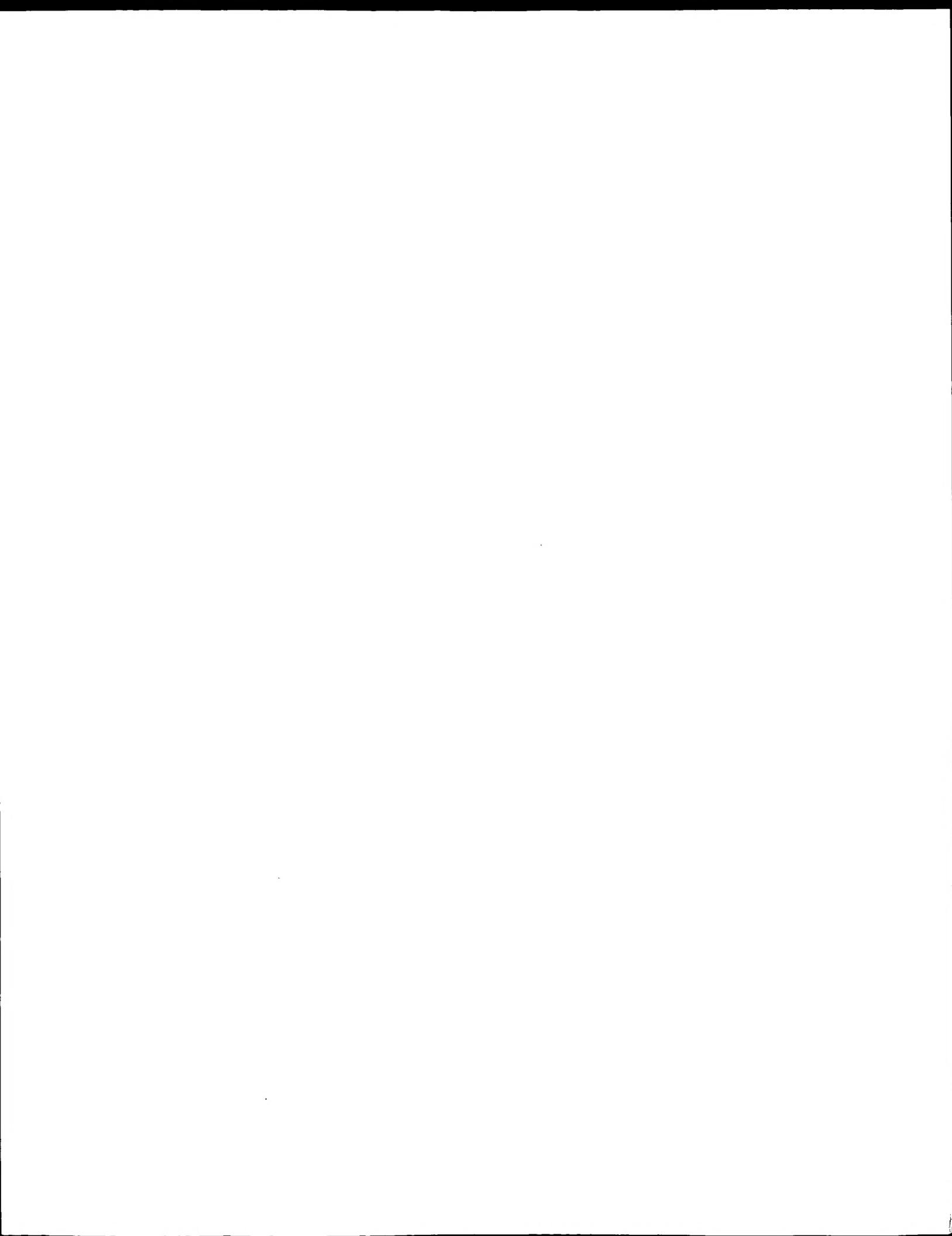
Name and Address WILEX AG Grillparzerstrasse 10B D-81675 München Germany	State of Nationality DE	State of Residence DE
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

3. Further observations, if necessary:

4. A copy of this notification has been sent to:

<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned
<input type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer François BAECHLER Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 G-20(CLASS)	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPOO/09382	国際出願日 (日.月.年) 28.12.00	優先日 (日.月.年) 11.01.00
出願人(氏名又は名称) 日本板硝子株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 この国際出願に含まれる書面による配列表

この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は 出願人が提出したものを承認する。

次に示すように国際調査機関が作成した。

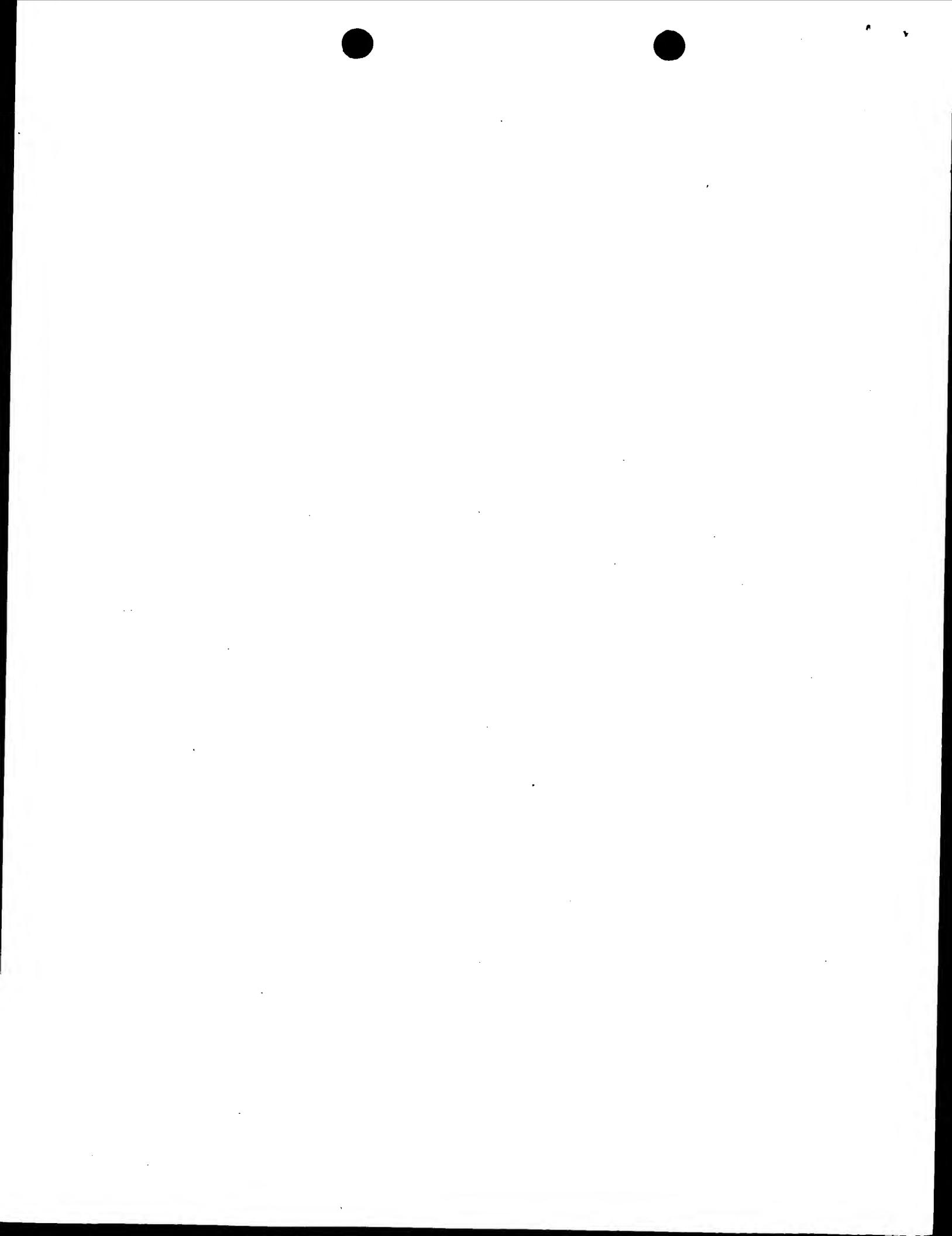
5. 要約は 出願人が提出したものを承認する。

第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1ヶ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、
第 _____ 図とする。 出願人が示したとおりである. なし

出願人は図を示さなかった。

本図は発明の特徴を一層よく表している。



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	E P, 965885, A (Kansai Research Institute) , 22. 12月. 1999 (22. 12. 99) , & U S, 6183935, A&WO, 9935536, A&J P, 11-194491, A	1-27
Y	J P, 11-338145, A (富士フィルムオーリン株式会 社) , 10. 12月. 1999 (10. 12. 99) , 【0044】-【0047】、(ファミリーなし)	1-27

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
もの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日
以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する
文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって
出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論
の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明
の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以
上の文献との、当業者にとって自明である組合せに
よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03. 04. 01

国際調査報告の発送日

17.04.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

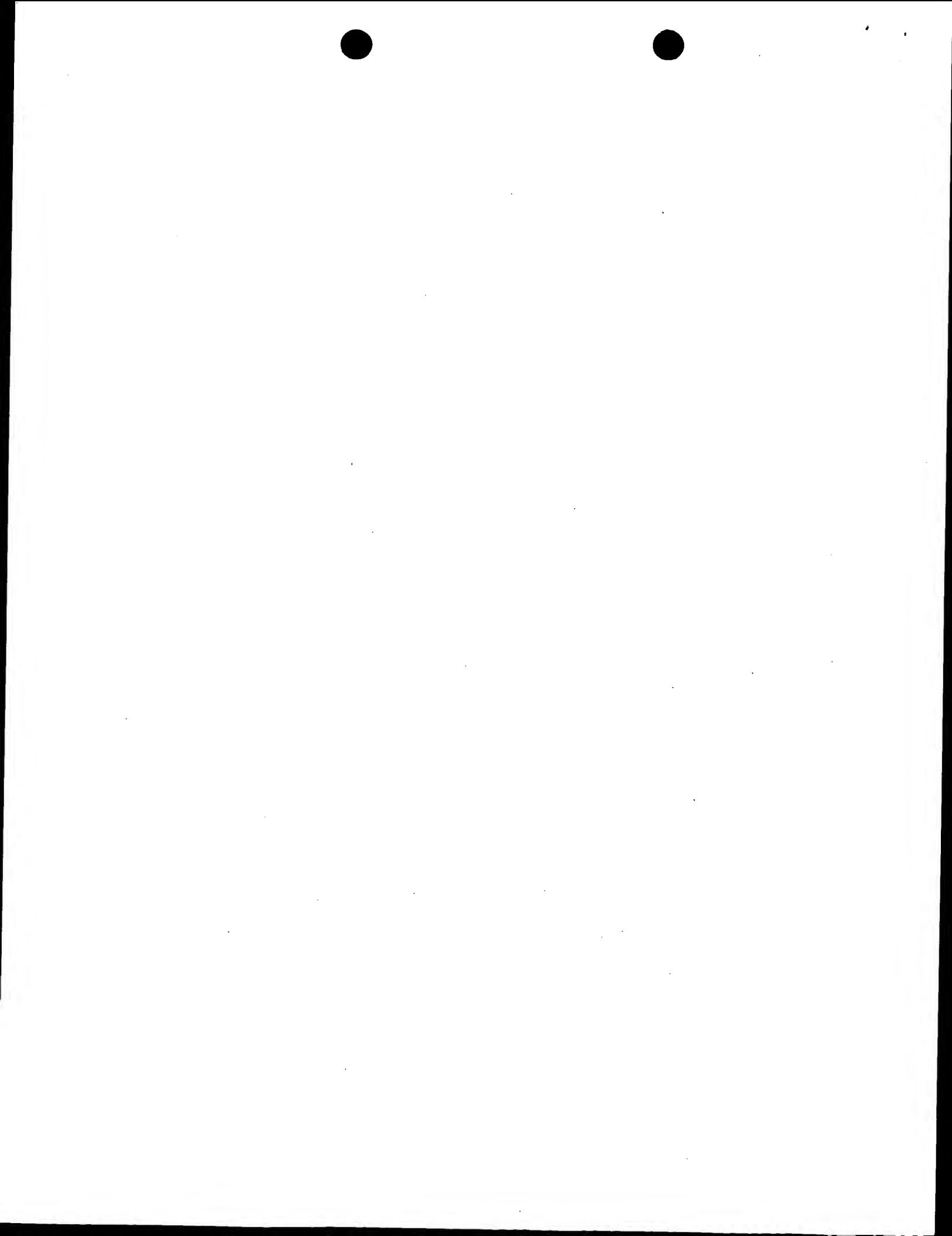
特許庁審査官 (権限のある職員)

前田 佳与子

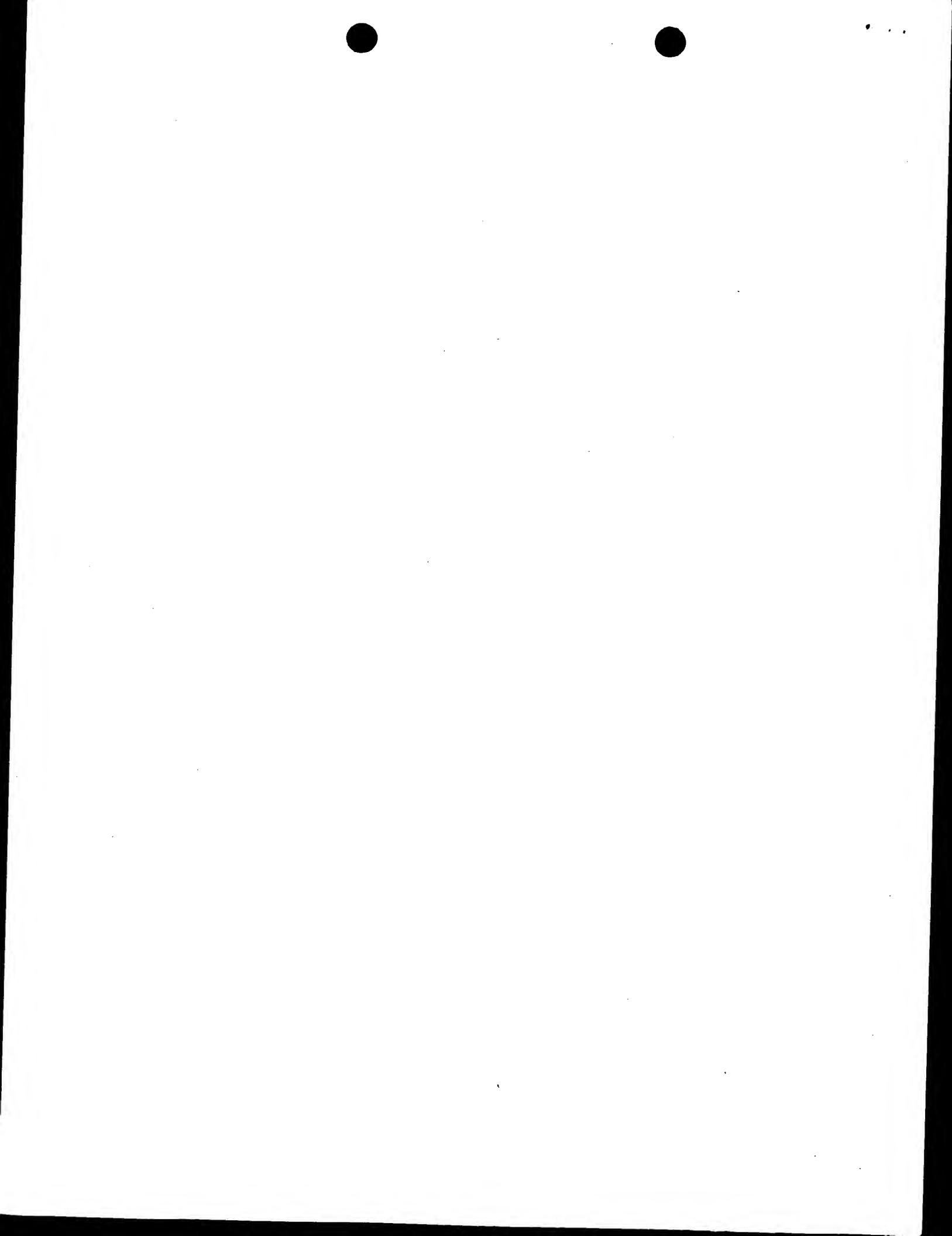
2M 9019



電話番号 03-3581-1101 内線 3273



C (続き) 関連すると認められる文献		関連する請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	JP, 6-148880, A (日本板硝子株式会社)、 27. 5月. 1994 (27. 05. 94)、【0014】、(フ アミリーなし)	1-27
Y	EP, 938027, A (Lucent Technologies Inc.)、 25. 8月. 1999 (25. 08. 99)、& JP, 11-34 4917, A	1-27
Y	US, 5271797, A (Rohm Co., Ltd.)、21. 12月. 1 993 (21. 12. 93)、& JP, 5-116454, A	1-27
Y	JP, 7-305030, A (日産化学工業株式会社)、 21. 11月. 1995 (21. 11. 95)、 【0011】-【0015】、(フアミリーなし)	1-27



PCT

REQUEST

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty.

For receiving Office use only

International Application No.

International Filing Date

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference

(if desired) (12 characters maximum) G - 2 0 (GLASS)

Box No. I TITLE OF INVENTION
PRODUCTION METHOD OF PATTERN FILM-COATED ARTICLE AND PHOTORESITIVE COMPOSITION

Box No. II APPLICANT

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

NIPPON SHEET GLASS CO., LTD.

7-28, Kitahama 4-chome, Chuo-ku, Osaka-shi, OSAKA
541-0041 JAPAN

This person is also inventor.

Telephone No.

Faximile No.

Teleprinter No.

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant all designated States all designated States except the United States of America the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box

Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

MINAMI Tsutomu

7-1, Oonodai 2-chome, Osakasayama-shi, OSAKA
589-0023 JAPAN

This person is:

applicant only

applicant and inventor

inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant all designated States all designated States except the United States of America the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box

Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.

Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE

The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as:

agent

common representative

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.)

8060 OHSHIMA Masataka

OHSHIMA PATENT OFFICE, Fukuya Bldg.,
3, Yotsuya 4-chome, Shinjuku-ku,
TOKYO 160-0004 JAPAN

Telephone No.

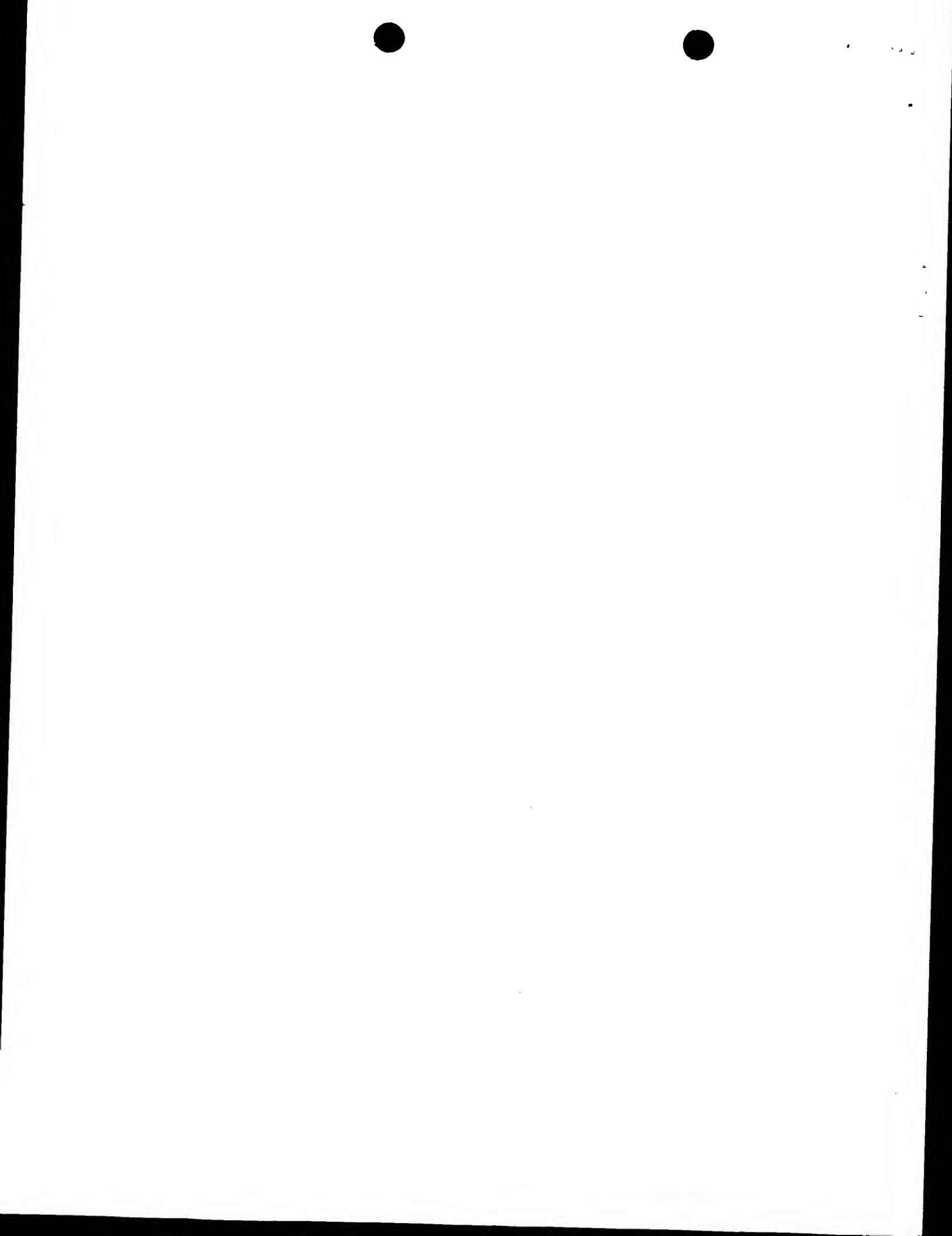
03-3356-7565

Faximile No.

03-3356-8826

Teleprinter No.

Address for correspondence: Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent.



Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

If none of the following sub-boxes is used, this sheet should not be included in the request.

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

TATSUMISAGO Masahiro

128-16, Oomino, Sakai-shi, OSAKA 599-8126 JAPAN

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

 all designated States all designated States except the United States of America the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

TADANAGA Kiyoharu

998-3, Nakamozucho 6-chome, Sakai-shi, OSAKA
591-8023 JAPAN

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

 all designated States all designated States except the United States of America the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

MATSUDA Atsunori

12-5, Nakamachi, Midorigaoka, Kawachi Nagano-shi,
OSAKA 586-0082 JAPAN

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

 all designated States all designated States except the United States of America the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

KAWADU Mitsuhiro

c/o Nippon Sheet Glass Co., Ltd.,
7-23, Kitahama 4-chome, Chuo-ku,
Osaka-shi, OSAKA 541-0041 JAPAN

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

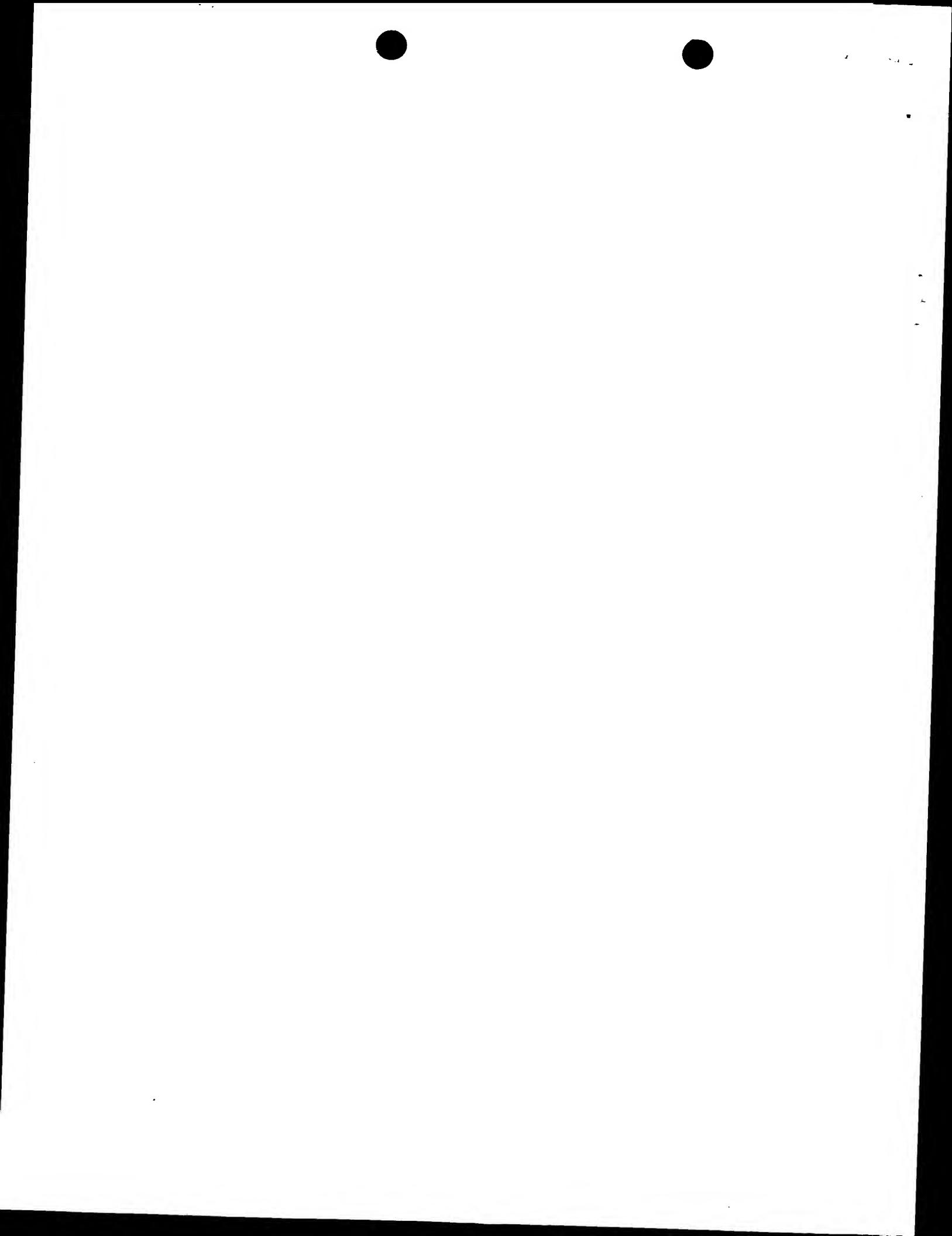
State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant for the purposes of:

 all designated States all designated States except the United States of America the United States of America only the States indicated in the Supplemental Box Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.

See Notes to the request form



Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)

If none of the following sub-boxes is used, this sheet should not be included in the request.

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

NAKAMURA Koichiro

c/o Nippon Sheet Glass Co., Ltd.,
7-28, Kitahama 4-chome, Chuo-ku,
Osaka-shi, OSAKA 541-0041 JAPAN

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant
for the purposes of: all designated
States all designated States except
the United States of America the United States
of America only the States indicated in
the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

YAMAMOTO Hiroaki

c/o Nippon Sheet Glass Co., Ltd.,
7-28, Kitahama 4-chome, Chuo-ku,
Osaka-shi, OSAKA 541-0041 JAPAN

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

JAPAN

State (that is, country) of residence:

JAPAN

This person is applicant
for the purposes of: all designated
States all designated States except
the United States of America the United States
of America only the States indicated in
the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

State (that is, country) of residence:

This person is applicant
for the purposes of: all designated
States all designated States except
the United States of America the United States
of America only the States indicated in
the Supplemental Box

Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)

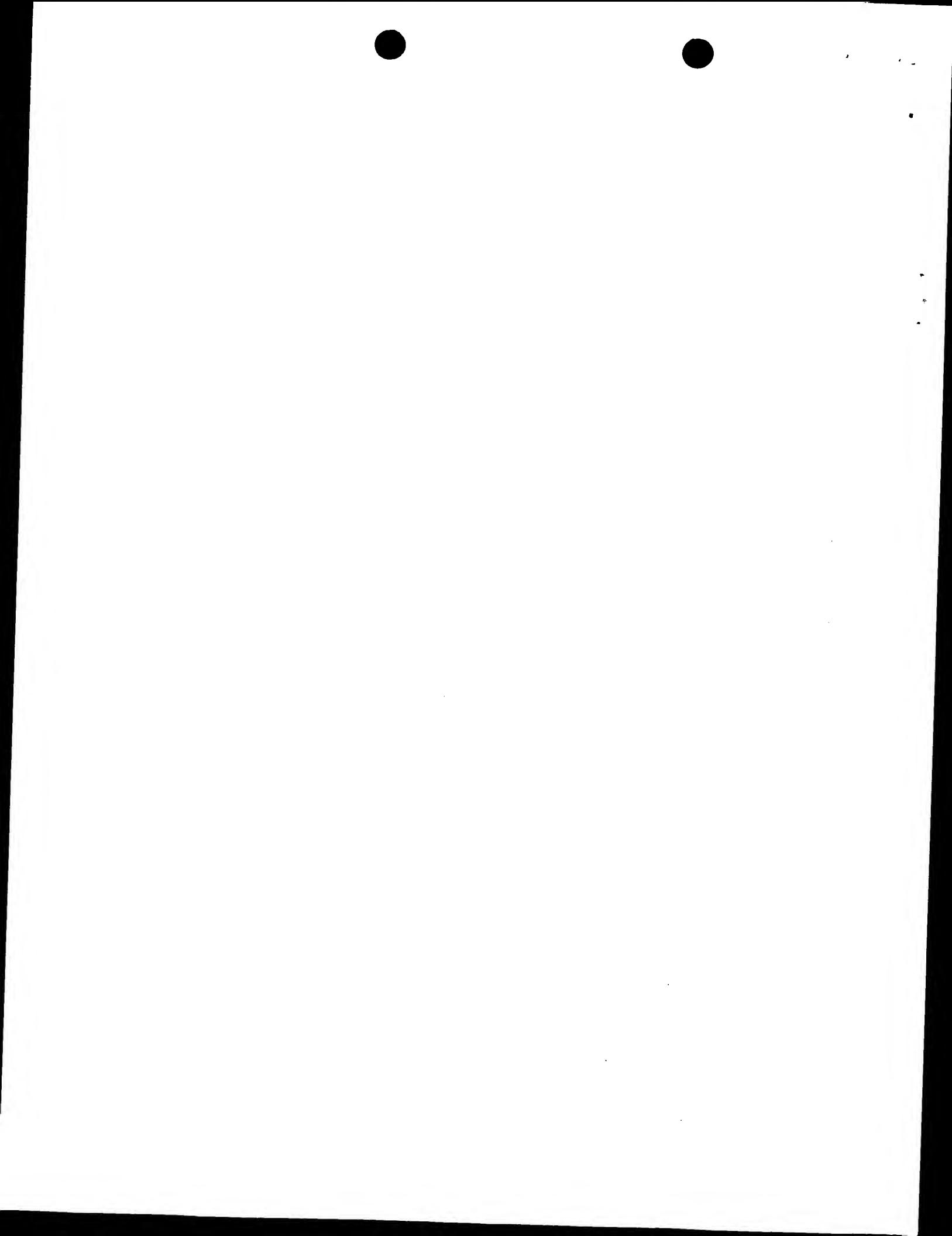
This person is:

 applicant only applicant and inventor inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)

State (that is, country) of nationality:

State (that is, country) of residence:

This person is applicant
for the purposes of: all designated
States all designated States except
the United States of America the United States
of America only the States indicated in
the Supplemental Box Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.



Box No.V DESIGNATION OF STATES

The following designations are hereby made under Rule 4.9(a) (mark the applicable check-boxes; at least one must be marked):

Regional Patent

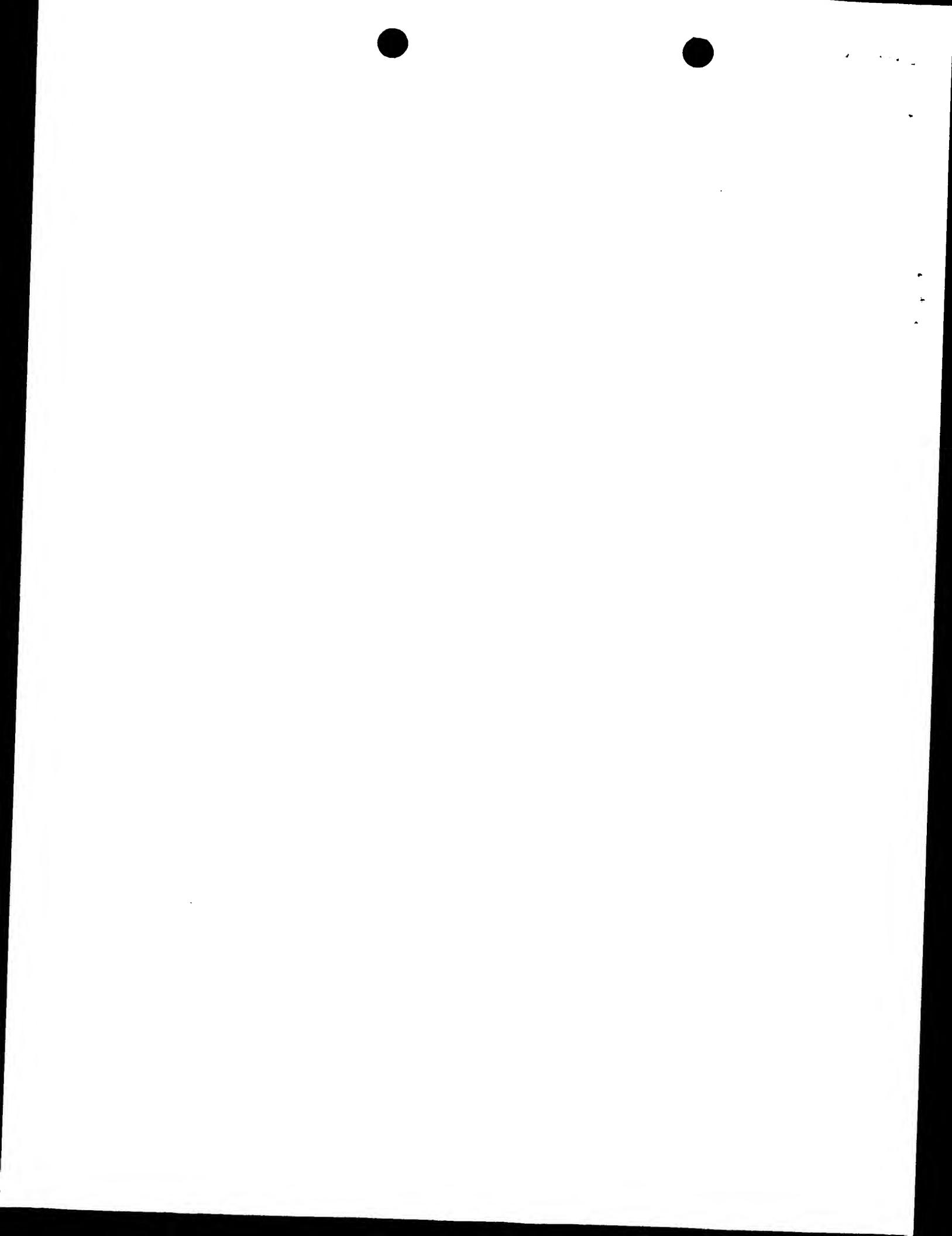
- AP ARIPO Patent: GH Ghana, GM Gambia, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SL Sierra Leone, SZ Swaziland, TZ United Republic of Tanzania, UG Uganda, ZW Zimbabwe, and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT
- EA Eurasian Patent: AM Armenia, AZ Azerbaijan, BY Belarus, KG Kyrgyzstan, KZ Kazakhstan, MD Republic of Moldova, RU Russian Federation, TJ Tajikistan, TM Turkmenistan, and any other State which is a Contracting State of the Eurasian Patent Convention and of the PCT
- EP European Patent: AT Austria, BE Belgium, CH and LI Switzerland and Liechtenstein, CY Cyprus, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FI Finland, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT
- OA OAPI Patent: BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroon, GA Gabon, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and any other State which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line)

National Patent (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line):

- | | | |
|---|--|--|
| <input type="checkbox"/> AE United Arab Emirates | <input type="checkbox"/> LR Liberia | |
| <input type="checkbox"/> AL Albania | <input type="checkbox"/> LS Lesotho | |
| <input type="checkbox"/> AM Armenia | <input type="checkbox"/> LT Lithuania | |
| <input type="checkbox"/> AT Austria | <input type="checkbox"/> LU Luxembourg | |
| <input type="checkbox"/> AU Australia | <input type="checkbox"/> LV Latvia | |
| <input type="checkbox"/> AZ Azerbaijan | <input type="checkbox"/> MA Morocco | |
| <input type="checkbox"/> BA Bosnia and Herzegovina | <input type="checkbox"/> MD Republic of Moldova | |
| <input type="checkbox"/> BB Barbados | <input type="checkbox"/> MG Madagascar | |
| <input type="checkbox"/> BG Bulgaria | <input type="checkbox"/> MK The former Yugoslav Republic of Macedonia | |
| <input type="checkbox"/> BR Brazil | <input type="checkbox"/> MN Mongolia | |
| <input type="checkbox"/> BY Belarus | <input type="checkbox"/> MW Malawi | |
| <input type="checkbox"/> CA Canada | <input type="checkbox"/> MX Mexico | |
| <input type="checkbox"/> CH and LI Switzerland and Liechtenstein | <input type="checkbox"/> NO Norway | |
| <input type="checkbox"/> CN China | <input type="checkbox"/> NZ New Zealand | |
| <input type="checkbox"/> CR Costa Rica | <input type="checkbox"/> PL Poland | |
| <input type="checkbox"/> CU Cuba | <input type="checkbox"/> PT Portugal | |
| <input type="checkbox"/> CZ Czech Republic | <input type="checkbox"/> RO Romania | |
| <input type="checkbox"/> DE Germany | <input type="checkbox"/> RU Russian Federation | |
| <input type="checkbox"/> DK Denmark | <input type="checkbox"/> SD Sudan | |
| <input type="checkbox"/> DM Dominica | <input type="checkbox"/> SE Sweden | |
| <input type="checkbox"/> EE Estonia | <input type="checkbox"/> SG Singapore | |
| <input type="checkbox"/> ES Spain | <input type="checkbox"/> SI Slovenia | |
| <input type="checkbox"/> FI Finland | <input type="checkbox"/> SK Slovakia | |
| <input type="checkbox"/> GB United Kingdom | <input type="checkbox"/> SL Sierra Leone | |
| <input type="checkbox"/> GD Grenada | <input type="checkbox"/> TJ Tajikistan | |
| <input type="checkbox"/> GE Georgia | <input type="checkbox"/> TM Turkmenistan | |
| <input type="checkbox"/> GH Ghana | <input type="checkbox"/> TR Turkey | |
| <input type="checkbox"/> GM Gambia | <input type="checkbox"/> TT Trinidad and Tobago | |
| <input type="checkbox"/> HR Croatia | <input type="checkbox"/> TZ United Republic of Tanzania | |
| <input type="checkbox"/> HU Hungary | <input type="checkbox"/> UA Ukraine | |
| <input type="checkbox"/> ID Indonesia | <input type="checkbox"/> UG Uganda | |
| <input type="checkbox"/> IL Israel | <input checked="" type="checkbox"/> US United States of America | |
| <input type="checkbox"/> IN India | <input type="checkbox"/> UZ Uzbekistan | |
| <input type="checkbox"/> IS Iceland | <input type="checkbox"/> VN Viet Nam | |
| <input type="checkbox"/> JP Japan | <input type="checkbox"/> YU Yugoslavia | |
| <input type="checkbox"/> KE Kenya | <input type="checkbox"/> ZA South Africa | |
| <input type="checkbox"/> KG Kyrgyzstan | <input type="checkbox"/> ZW Zimbabwe | |
| <input type="checkbox"/> KP Democratic People's Republic of Korea | Check-boxes reserved for designating States which have become party to the PCT after issuance of this sheet: | |
| <input type="checkbox"/> KR Republic of Korea | <input type="checkbox"/> | |
| <input type="checkbox"/> KZ Kazakhstan | <input type="checkbox"/> | |
| <input type="checkbox"/> LC Saint Lucia | <input type="checkbox"/> | |
| <input type="checkbox"/> LK Sri Lanka | <input type="checkbox"/> | |

Precautionary Designation Statement: In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all other designations which would be permitted under the PCT except any designation(s) indicated in the Supplemental Box as being excluded from the scope of this statement. The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time limit. (Confirmation (including fees) must reach the receiving Office within the 15-month time limit)

See Notes to the request form



Box No. VI PRIORITY CLAIM		<input type="checkbox"/> Further priority claims are indicated in the Supplemental Box.		
Filing date of earlier application (day/month/year)	Number of earlier application	Where earlier application is:		
		national application: country	regional application: ^a regional Office	international application: receiving Office
item (1) 11.01.00	Patent Application No. 2000-002881	Japan		
item (2)				
item (3)				

The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) (only if the earlier application was filed with the Office which for the purposes of the present international application is the receiving Office) identified above as item(s): (1)

* Where the earlier application is an ARIPO application, it is mandatory to indicate in the Supplemental Box at least one country party to the Paris Convention for the Protection of Industrial Property for which that earlier application was filed (Rule 4.10(b)(ii)). See Supplemental Box.

Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

Choice of International Searching Authority (ISA)
(if two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used):

ISA / JP

Request to use results of earlier search; reference to that search (if an earlier search has been carried out by or requested from the International Searching Authority):

Date (day/month/year) Number Country (or regional Office)

Box No. VIII CHECK LIST; LANGUAGE OF FILING

This international application contains the following number of sheets:

request	:	5
description (excluding sequence listing part)	:	15
claims	:	5
abstract	:	1
drawings	:	0
sequence listing part of description	:	0
Total number of sheets	:	26

This international application is accompanied by the item(s) marked below:

1. fee calculation sheet
2. separate signed power of attorney
3. copy of general power of attorney, reference number, if any:
4. statement explaining lack of signature
5. priority document(s) identified in Box No. VI as item(s):
6. translation of international application into (language):
7. separate indications concerning deposited microorganism or other biological material
8. nucleotide and/or amino acid sequence listing in computer readable form
9. other (specify):

Figure of the drawings which should accompany the abstract:

Language of filing of the international application: Japanese

Box No. IX SIGNATURE OF APPLICANT OR AGENT

Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request).

(8060) OHSHIMA Masataka, patent attorney

For receiving Office use only

1. Date of actual receipt of the purported international application:
3. Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application:
4. Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2):
5. International Searching Authority (if two or more are competent): ISA / JP

6. Transmittal of search copy delayed until search fee is paid.

2. Drawings:

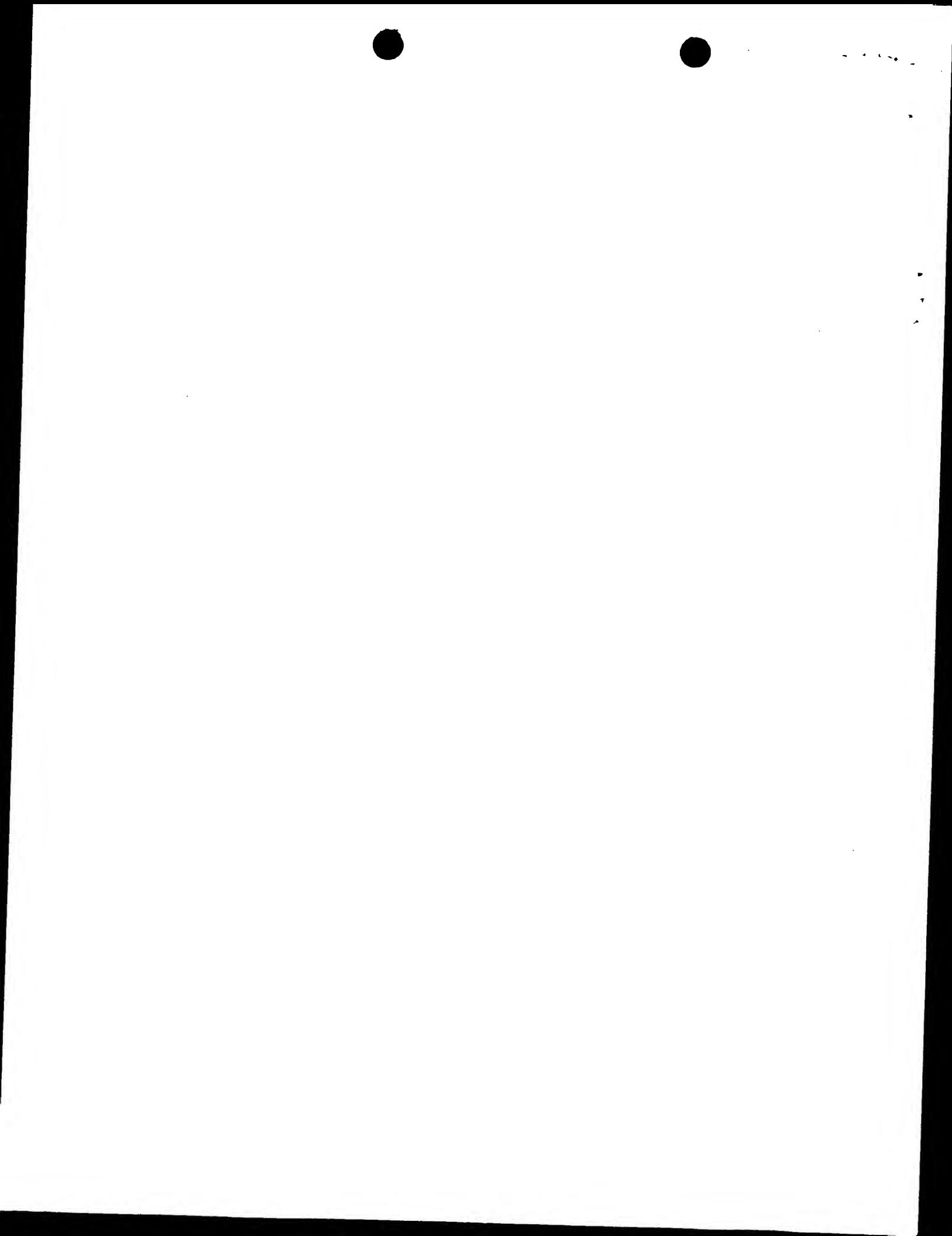
received:

not received:

For International Bureau use only

Date of receipt of the record copy by the International Bureau:

See Notes to the request form



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF RECEIPT OF RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OHSHIMA, Masataka
 Ohshima Patent Office
 Fukuya Building
 3, Yotsuya 4-chome
 Shinjuku-ku
 Tokyo 160-0004
 JAPON

MO

Date of mailing (day/month/year) 05 February 2001 (05.02.01)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference G-20 (GLASS)	International application No. PCT/JP00/09382

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

NIPPON SHEET GLASS CO., LTD. (for all designated States except US)
 MINAMI, Tsutomu (all designated States)
 TATSUMISAGO, Masahiro et al (for US)

International filing date : 28 December 2000 (28.12.00)
 Priority date(s) claimed : 11 January 2000 (11.01.00)
 Date of receipt of the record copy by the International Bureau : 19 January 2001 (19.01.01)
 List of designated Offices :
 EP :AT,BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE,TR
 National :US

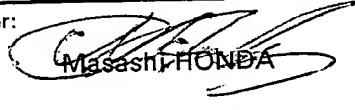
ATTENTION

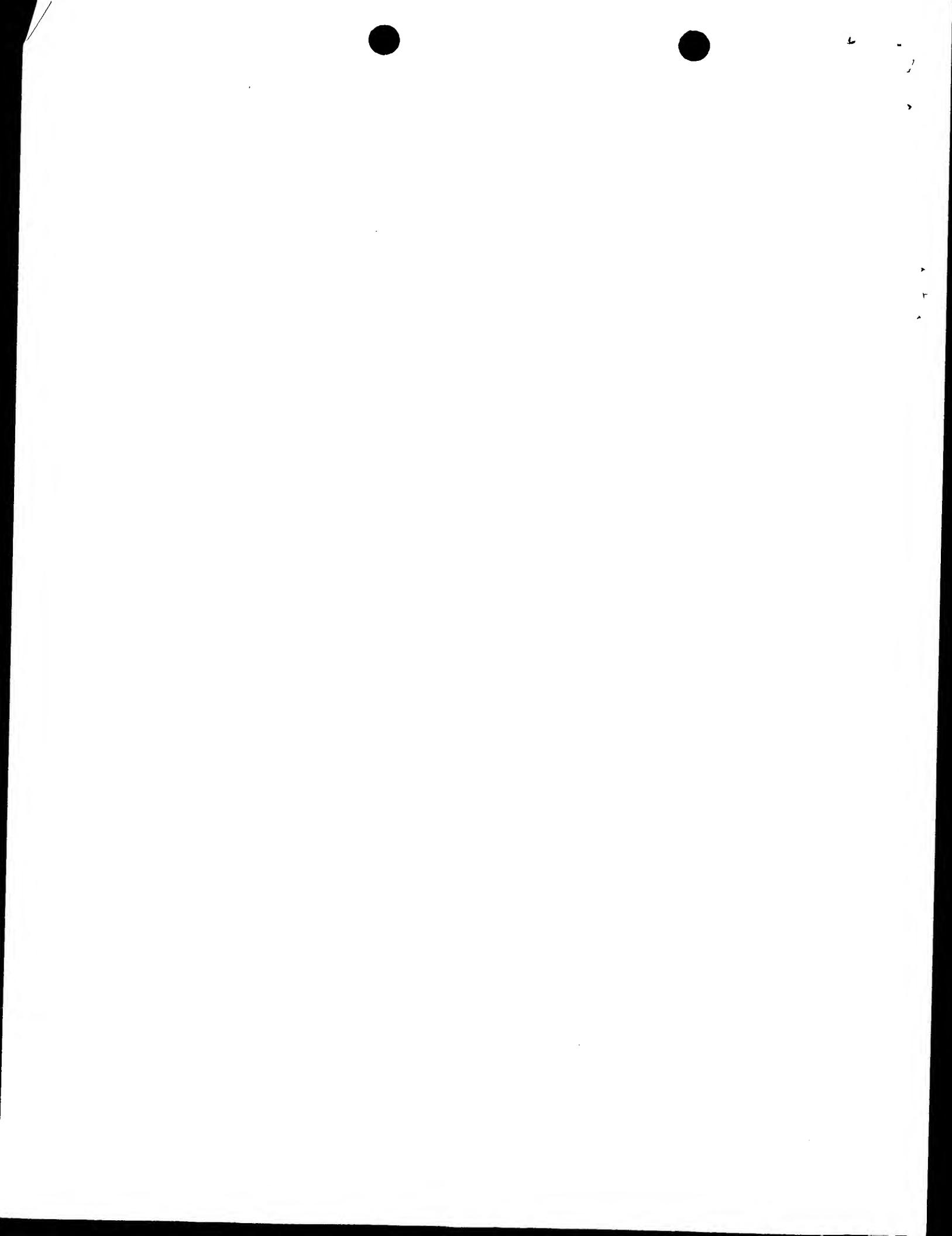
The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- time limits for entry into the national phase
- confirmation of precautionary designations
- requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  Masashi HONDA Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--



INFORMATION ON TIME LIMITS FOR ENTERING THE NATIONAL PHASE

The applicant is reminded that the "national phase" must be entered before each of the designated Offices indicated in the Notification of Receipt of Record Copy (Form PCT/IB/301) by paying national fees and furnishing translations, as prescribed by the applicable national laws.

The time limit for performing these procedural acts is **20 MONTHS** from the priority date or, for those designated States which the applicant elects in a demand for international preliminary examination or in a later election, **30 MONTHS** from the priority date, provided that the election is made before the expiration of 19 months from the priority date. Some designated (or elected) Offices have fixed time limits which expire even later than 20 or 30 months from the priority date. In other Offices an extension of time or grace period, in some cases upon payment of an additional fee, is available.

In addition to these procedural acts, the applicant may also have to comply with other special requirements applicable in certain Offices. It is the applicant's responsibility to ensure that the necessary steps to enter the national phase are taken in a timely fashion. Most designated Offices do not issue reminders to applicants in connection with the entry into the national phase.

For detailed information about the procedural acts to be performed to enter the national phase before each designated Office, the applicable time limits and possible extensions of time or grace periods, and any other requirements, see the relevant Chapters of Volume II of the PCT Applicant's Guide. Information about the requirements for filing a demand for international preliminary examination is set out in Chapter IX of Volume I of the PCT Applicant's Guide.

GR and ES became bound by PCT Chapter II on 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, and may, therefore, be elected in a demand or a later election filed on or after 7 September 1996 and 6 September 1997, respectively, regardless of the filing date of the international application. (See second paragraph above.)

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

CONFIRMATION OF PRECAUTIONARY DESIGNATIONS

This notification lists only specific designations made under Rule 4.9(a) in the request. It is important to check that these designations are correct. Errors in designations can be corrected where precautionary designations have been made under Rule 4.9(b). The applicant is hereby reminded that any precautionary designations may be confirmed according to Rule 4.9(c) before the expiration of 15 months from the priority date. If it is not confirmed, it will automatically be regarded as withdrawn by the applicant. There will be no reminder and no invitation. Confirmation of a designation consists of the filing of a notice specifying the designated State concerned (with an indication of the kind of protection or treatment desired) and the payment of the designation and confirmation fees. Confirmation must reach the receiving Office within the 15-month time limit.

REQUIREMENTS REGARDING PRIORITY DOCUMENTS

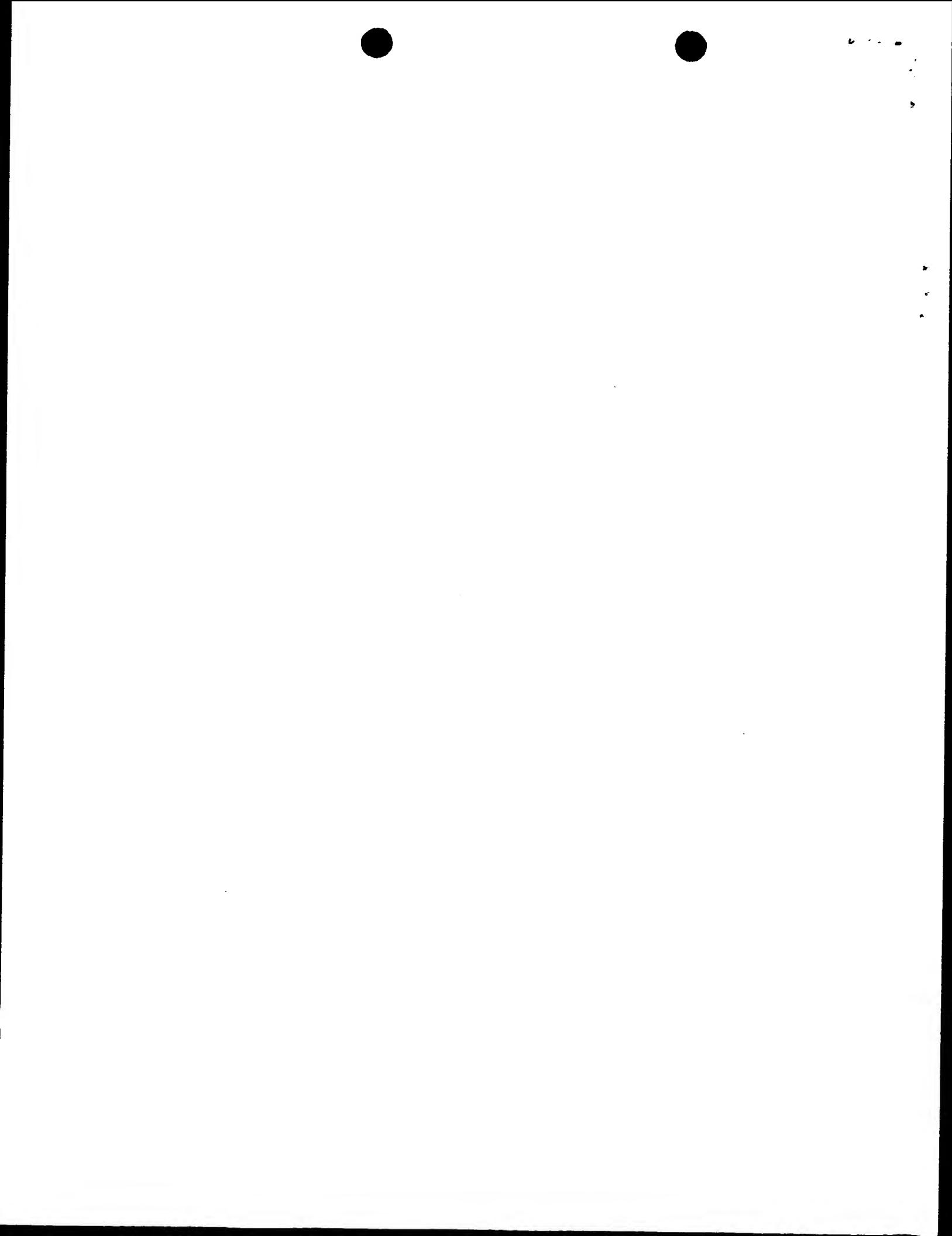
For applicants who have not yet complied with the requirements regarding priority documents, the following is recalled.

Where the priority of an earlier national, regional or international application is claimed, the applicant must submit a copy of the said earlier application, certified by the authority with which it was filed ("the priority document") to the receiving Office (which will transmit it to the International Bureau) or directly to the International Bureau, before the expiration of 16 months from the priority date, provided that any such priority document may still be submitted to the International Bureau before that date of international publication of the international application, in which case that document will be considered to have been received by the International Bureau on the last day of the 16-month time limit (Rule 17.1(a)).

Where the priority document is issued by the receiving Office, the applicant may, instead of submitting the priority document, request the receiving Office to prepare and transmit the priority document to the International Bureau. Such request must be made before the expiration of the 16-month time limit and may be subjected by the receiving Office to the payment of a fee (Rule 17.1(b)).

If the priority document concerned is not submitted to the International Bureau or if the request to the receiving Office to prepare and transmit the priority document has not been made (and the corresponding fee, if any, paid) within the applicable time limit indicated under the preceding paragraphs, any designated State may disregard the priority claim, provided that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Where several priorities are claimed, the priority date to be considered for the purposes of computing the 16-month time limit is the filing date of the earliest application whose priority is claimed.

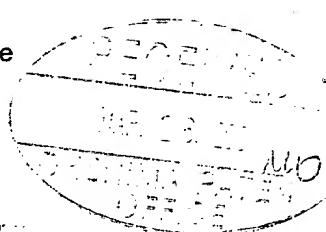


PATENT COOPERATION TREATY

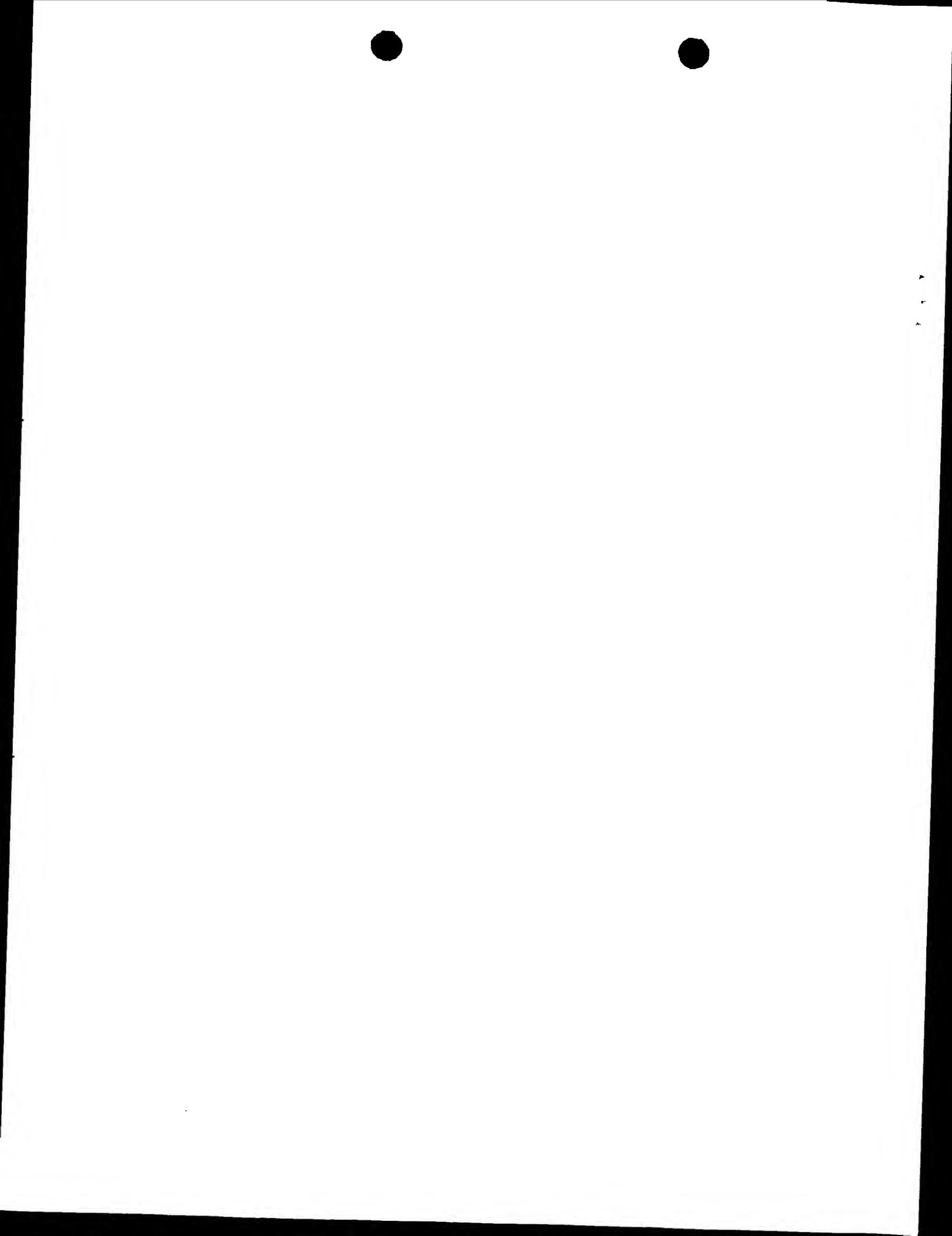
PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year) 16 March 2001 (16.03.01)	From the INTERNATIONAL BUREAU To: OHSHIMA, Masataka Ohshima Patent Office Fukuya Building 3, Yotsuya 4-chome Shinjuku-ku Tokyo 160-0004 JAPON  16.03.2001		
Applicant's or agent's file reference G-20 (GLASS)	IMPORTANT NOTIFICATION		
International application No. PCT/JP00/09382	International filing date (day/month/year) 28 December 2000 (28.12.00)		
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 11 January 2000 (11.01.00)		
Applicant NIPPON SHEET GLASS CO., LTD. et al			
<p>1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).</p> <p>2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.</p> <p>3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.</p> <p>4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.</p>			
<u>Priority date</u> 11 Janu 2000 (11.01.00)	<u>Priority application No.</u> 2000/2881	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u> JP	<u>Date of receipt of priority document</u> 02 Marc 2001 (02.03.01)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer Marc Salzman Telephone No. (41-22) 338.83.38 
--	--



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

Date of mailing (day/month/year) 19 July 2001 (19.07.01)	<p style="text-align: right;">RECEIVED JUL 30 2001 OHSHIMA PATENT OFFICE</p> <p style="text-align: center;">JUL 30 2001</p>	
Applicant's or agent's file reference G-20 (GLASS)	IMPORTANT NOTICE	
International application No. PCT/JP00/09382	International filing date (day/month/year) 28 December 2000 (28.12.00)	Priority date (day/month/year) 11 January 2000 (11.01.00)
Applicant NIPPON SHEET GLASS CO., LTD. et al		

- Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

- The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

- Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 19 July 2001 (19.07.01) under No. WO 01/51992

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 18 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

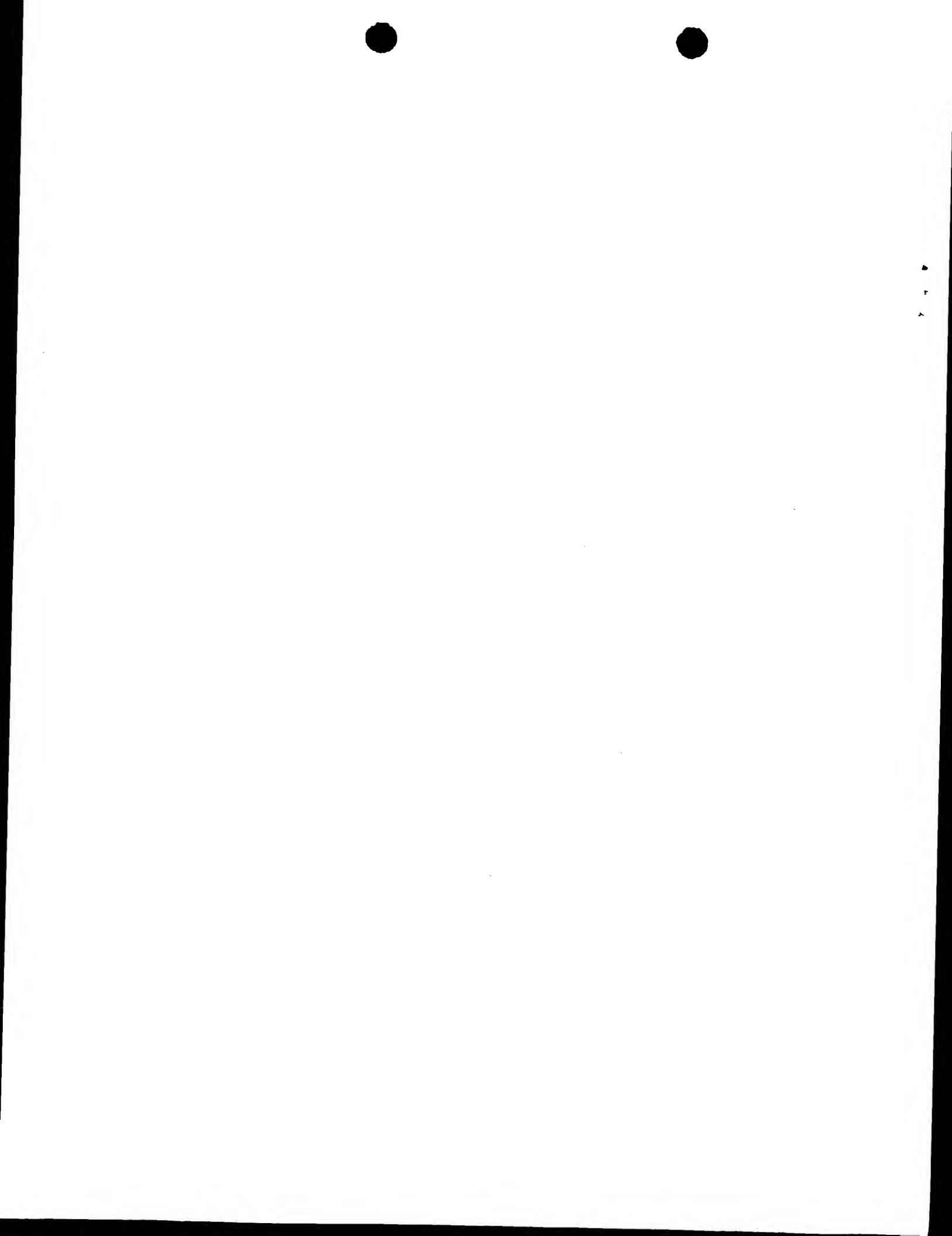
REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

4145423



(19)世界知的所有権機関
国際事務局(43)国際公開日
2001年7月19日 (19.07.2001)

PCT

(10)国際公開番号
WO 01/51992 A1(51)国際特許分類:
G03F 7/075, 7/027,
C08L 83/04, 85/00, G02B 5/18, 3/00[JP/JP]; 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7
番28号 Osaka (JP).(21)国際出願番号:
PCT/JP00/09382

(71)出願人および

(22)国際出願日:
2000年12月28日 (28.12.2000)(72)発明者: 南 努 (MINAMI, Tsutomu) [JP/JP]; 〒589-
0023 大阪府大阪狭山市大野台2丁目7番1号 Osaka (JP).(25)国際出願の言語:
日本語

(73)発明者; および

(26)国際公開の言語:
日本語(74)発明者/出願人(米国についてのみ): 辰巳砂昌弘 (TATSU-
SUMI SAGO, Masahiro) [JP/JP]; 〒599-8126 大阪府堺
市大美野128-16 Osaka (JP). 忠永清治 (TADANAGA,
Kiyoharu) [JP/JP]; 〒591-8023 大阪府堺市中百舌鳥町6
丁目998-3 Osaka (JP). 松田厚範 (MATSDA, Atsunori)
[JP/JP]; 〒586-0082 大阪府河内長野市緑ヶ丘中町12-5
Osaka (JP). 河津光宏 (KAWADU, Mitsuhiro) [JP/JP]. 中
村浩一郎 (NAKAMURA, Koichiro) [JP/JP]. 山本博章(30)優先権データ:
特願2000-2881 2000年1月11日 (11.01.2000) JP
(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本板
硝子株式会社 (NIPPON SHEET GLASS CO., LTD.)

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING ARTICLE COATED WITH PATTERNED FILM AND PHOTOSENSITIVE COMPO-
SITION

(54)発明の名称: パターン膜被覆物品の製造方法および感光性組成物

(57) Abstract: A method for producing an article coated with a patterned film which comprises applying a photosensitive composition comprising an organic metal or silicon compound having photosensitivity and a metal or silicon alkoxide having hydrolyzability on a substrate, exposing the substrate to the radiation with a light to effect the polymerization of the exposed portion of the applied coating film, and then removing through dissolving the unexposed portion of the film, wherein the organic metal or silicon compound is a metal or silicon oxide containing an allyl group; and the above-described photosensitive composition. The article coated with a patterned film produced by the method has a pattern from which an unexposed film has been completely removed by the development after radiation with a light, and thus is excellent in the accuracy of patterning.

(57)要約:

成膜性が優れ、光照射後の現像において光未照射部の膜を完全に除去すること
ができ、パターン精度に優れたパターン膜被覆物品の製造方法および感光性組成
物を提供する。

感光性を有する有機金属もしくはケイ素化合物および加水分解性金属もしくは
ケイ素アルコキシドを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の
露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製
造方法であり、前記有機金属もしくはケイ素化合物としてアリル基含有金属もし
くはケイ素アルコキシドを用いてパターン膜被覆物品を製造する方法である。

WO 01/51992 A1



(YAMAMOTO, Hiroaki) [JP/JP]; 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番28号 日本板硝子株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 弁理士 大島正孝(OHSHIMA, Masataka); 〒160-0004 東京都新宿区四谷四丁目3番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

添付公開書類:
— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09382

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl' G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl' G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP, 965885, A (Kansai Research Institute), 22 December, 1999 (22.12.99) & US, 6183935, A & WO, 9935536, A & JP, 11-194491, A	1-27
Y	JP, 11-338145, A (Fujifilm Olin Co., Ltd.), 10 December, 1999 (10.12.99), Par. Nos. [0044] to [0047] (Family: none)	1-27
Y	JP, 6-148880, A (Nippon Sheet Glass Company, Limited), 27 May, 1994 (27.05.94), Par. No. [0014] (Family: none)	1-27
Y	EP, 938027, A (Lucent Technologies Inc.), 25 August, 1999 (25.08.99) & JP, 11-344917, A	1-27
Y	US, 5271797, A (Rohm Co., Ltd.), 21 December, 1993 (21.12.93) & JP, 5-116454, A	1-27

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
03 April, 2001 (03.04.01)

Date of mailing of the international search report
17 April, 2001 (17.04.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

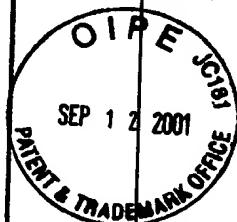
INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09382

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-305030, A (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 21 November, 1995 (21.11.95), Par. Nos. [0011] to [0015] (Family: none)	1-27



明細書

パターン膜被覆物品の製造方法および感光性組成物

5 技術分野

本発明はパターン膜被覆物品の製造方法、特に感光性を有する有機金属化合物を含む感光性組成物を基材上に塗布した後、光照射し重合硬化させた後、光未照射部を取り除くパターン膜被覆物品の製造方法、および感光性組成物に関する。

従来の技術

10 従来からパターン膜を形成させるための感光性材料の開発は進められてきており、数多く提案されている。一般的に感光性材料に求められる要求特性としては、次のようなものが挙げられる。①照射するエネルギーに対して高感度である。②高解像度である。すなわちパターン精度および加工性が優れている。③基板との密着性が高い。など。これまで感光性を有するゾルゲル材料を用いて金属元素および両性元素の酸化物薄膜のパターンを形成することが試みられている。

15 JOURNAL OF LIGHTWAVE TECHNOLOGY, VOL. 16, No. 9, pp 1640~1646, SEPTEMBER 1998年、
SPIE Vol. 3282, 頁17~30、およびSPIE Vol. 328
2, 頁50~58には、メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、ジルコニウムアルコキシドおよびアクリル酸などからなる感光性材料を用いて、露光・現像(リーチング)によりグレーティングを有する光導波路素子を作製することが述べられている。

しかし、上記方法では、露光後の現像において光未照射部の膜を十分に除去することが困難であるため良好なパターンが得られない。そのために、導波路を作製する場合は導波光が漏れたり、回折格子を作製する場合には回折光の明瞭なパターンは得られずにばやけたりあるいは回折光同士がつながったりするというような問題があった。

発明の開示

それ故、本発明の目的は、成膜性が優れ、光照射後の現像において光未照射部の膜を完全に除去することができ（いわゆる「リーチングの切れ」がよく）そしてパターン精度に優れたパターン膜被覆物品を製造するための製造方法およびそのための感光性組成物を提供することにある。

- 5 本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第1に、感光性を有する有機金属もしくはケイ素化合物および加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法において、前記有機金属もしくはケイ素化合物はアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドであることを特徴とするパターン膜被覆物品の製造方法によって達成される。
- 10 本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第2に、アリル基を有するトリアルコキシランを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法により達成される。
- 15 本発明によれば、本発明の上記目的および利点は、第3に、アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド、光反応開始剤、重合促進剤および水を主成分とする感光性組成物によって達成される。

発明の好ましい実施態様

- 本発明における感光性組成物で用いられる感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドとして、例えばそれぞれアリル基を含有するケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを挙げることができる。これらの中でアリル基を有するケイ素アルコキシドが好ましく用いられる。アリル基を有するケイ素のアルコキシド（以下、単に「アリルシラン」ということがある）としては、例えばアリルトリメトキシラン、アリルトリエトキシランのようなアリル基を有するトリアルコキシラン；ジアリルジメトキシラン、ジアリルジエトキシランのようなジアリルジアルコキシラン；およびアリルアミノトリメトキシラン；アリルトリクロロシラン、ジアリルジクロロシランなどのクロロアリルシランなど

が用いられる。それらの中で、アリルトリメトキシシランおよびアリルトリエトキシシランが特に好ましく用いられる。クロロアリルシランは反応時に塩化水素ガスが発生するので、クロロアリルシランを用いる時には作業環境に配慮する必要がある。

5 上記感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの含有量は前記感光性組成物中に5重量%以上であることが好ましく、95.49重量%以下であることが好ましい。

本発明における感光性組成物で用いられる加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドとしては、例えばケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを挙げることができ
10 15 10.それらの中でケイ素テトラーもしくはトリーアルコキシド、チタンテトラーもしくはトリーアルコキシドまたはジルコニウムテトラーもしくはトリーアルコキシドおよびアルミニウムのトリアルコキシドが好ましく用いられる。上記テトラアルコキシドおよびアルミニウムのトリアルコキシドとしては、例えばテトラエトキシシラン、テトラメトキシシラン、トリプトキシアルミニウム、テトラブロポキシジルコニウム、テトラブトキシジルコニウム、テトライソプロポキシチタンおよびテトラブトキシチタン等を挙げができる。

そして、ケイ素のトリアルコキシド、チタンのトリアルコキシドまたはジルコニウムのトリアルコキシドとしては、例えばメチルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシアルキルトリアルコキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-(N-アリルアミノ)プロピルトリメトキシシラン、(2-シクロヘキセン、3-(N-アリルアミノ)プロピルトリメトキシシラン、5-(ビシクロヘプテニル)トリアルコキシシラン、(アクリロキシメチル)フェネチルトリアルコキシシラン、1,1-ビス(トリアルコキシリルメチル)エチレン、ビス(トリエトキシリル)エチレン、ビス(トリエトキシリル)-1,7-オクタンジエン、ブテニルトリエトキシシラン、(3-シクロペンタジエニルプロピル)トリエトキシシラン、

- 5 -ヘキセニルトリアルコキシラン、O-(メタクリロキシエチル)-N-(トリエトキシシリルプロピル)ウレタン、1,7-オクタジエニルトリエトキシラン、7-オクテニルトリアルコキシラン、(2,4-ペンタジエニル)トリアルコキシラン、スチリルエチルトリメトキシラン、ビニルトリイソプロペノキシラン；チタンアリルアセトアセテートトリイソプロポキサイド、チタンメタクリレートトリイソプロポキサイド、チタンメタクリルオキシエチルアセトアセテートトリイソプロポキサイド、(2-メタクリルオキシエトキシ)トリイソプロポキシチタネット；ジルコニウムメタクリルオキシエチルアセトアセテートトリイソプロポキサイドなどを挙げることができる。
- 10 またジーアーブトキシアルミノキシトリエトキシランのような金属・ケイ素アルコキシドあるいは異種金属アルコキシドも用いられる。加水分解性金属もしくはケイ素テトラアルコキシドとしては、オリゴマー（例えば平均重合度が5以下のオリゴマー）でもよく、また一部または全部が加水分解していくてもよい。ただし、加水分解性金属もしくはケイ素テトラアルコキシドの含有量をモル%または重量%などで表す場合は、そのモノマーまたは加水分解前の物質について表すものとする。

これら加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、必要に応じて、アセチルアセトン、メチルアセチルアセトン、エチルアセチルアセトン、ジエチルアセチルアセトンのような β -ジケトンなどの配位子でキレート化されていてもよい。

20 アセチルアセトンアルミニウムやチタニウムアセチルアセトナートは後述の重合促進剤の作用を兼ね備えている。

これら加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド中で、テトラエトキシラン、テトラメトキシランおよびテトラブトキシジルコニウムが特に好ましく用いられる。例えばテトラブトキシジルコニウムを使用すると膜の硬度をさらに上げることができる。またジルコニウムアルコキシドやチタンアルコキシドを使用または併用することにより、膜の屈折率を高めて所望の値にすることができる。

本発明における感光性組成物に上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含ませることにより、強固なネットワークの膜を形成したり、膜の耐薬品性

を上げたり、膜の耐候性を向上させることができる。これらの加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの量は、あまり多すぎると相対的に前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの量が低下するので、アリルシランに対して1～50重量%が好ましい。より好ましくは5～40重量%である。上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの含有量は前記感光性組成物中に1重量%以上であることが好ましく、50重量%以下であることが好ましい。本発明におけるアリルシランとして、例えばアリルトリメトキシシラン、アリルトリエトキシランのようなアリルトリアルコキシランが用いられる場合は、感光性組成物中に上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含有させなくてもよい。

10 加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含有させない場合、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの含有量は前記感光性組成物中に、96.49重量%以下であることが好ましい。しかし、膜強度をさらに高くしたり、膜の耐薬品性をさらに上げたり、膜の耐候性をさらに向上させる場合には上記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを添加することが好ましい。

15 本発明における感光性組成物は、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドを加水分解するための水、ならびに、必要に応じて、前記加水分解を促進するための触媒、光反応開始剤、重合促進剤、溶媒を含有する。水の含有量は、触媒水溶液の水も含めて、必要な化学量論比の0.8～30倍であり、モル比で表して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計に対して1～20倍が好ましく、より好ましくは2～10倍である。そして感光性組成物中の好ましい水含有量は、好ましくは3～50重量%、より好ましくは5～30重量%である。ただし、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドがすでに部分的にまたは全面的に加水分解されているときは、水の含有量はゼロまたは上記よりも少量でよい。

20 前記触媒は、含有させることができが好ましい成分である。触媒としては、例えば塩酸、硝酸 (HNO_3)、硫酸などの無機酸類、酢酸、しゅう酸、蟻酸、プロピオン

25

酸、p-トルエンスルホン酸などの有機酸類が用いられる。触媒の含有量は、酸の種類およびプロトン酸としての強さ（弱酸、強酸）によって異なるが、少なすぎると加水分解・脱水縮合反応の進行が遅くなり、多すぎると縮合反応が進みすぎて分子量が大きくなりすぎ、沈殿物や塗布液のゲル化を生じやすくなるので好ましくない。従って添加する酸触媒の量は、例えば、酸触媒として塩酸を用いる場合については、モル比で表して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計1モルに対して、0.01ミリモル～100ミリモル（0.00001～0.1モル）が好ましく、より好ましくは0.05ミリモル～50ミリモルである。そして感光性組成物中の好ましい酸触媒含有量は、好ましくは0.00002～10重量%、より好ましくは0.0001～1重量%である。ただし、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドまたは感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドがすでに部分的にまたは全面的に加水分解されているときは、酸触媒の含有量はゼロまたは上記よりも少量でよい。

15 本発明における感光性組成物で用いられる光反応開始剤は、含有させることができ好ましい成分であり、前記感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド中の重合性炭素一炭素二重結合を有するアリル基に光を照射させた際に光重合を開始および促進させるものである。かかる開始剤としては、例えばベンゾフェノン、アセトフェノン、ベンゾインイソプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、過酸化ベンゾイル、1-ヒドロキシシクロヘキシル-1-フェニルケトン（チバガイギー社、「イルガキュア184」）、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン（メルク社、「ダロキュア1173」）、1-（4-イソプロピルフェニル）-2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン（メルク社、「ダロキュア1116」）、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン（チバガイギー社、「イルガキュア651」）等が好適に用いられる。光反応開始剤の含有量は前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド1モルに対して、0.001～0.2モルであることが好ましい。また感光性組成物中の光反応開始剤の含有量は0.1～20重量%であることが好ましく、さ

らに好ましくは0.5～10重量%である。

本発明で用いられる重合促進剤は、含有させることが好ましい成分であり、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドが加水分解した後に縮重合して、Si—O—Siの結合を形成する際の重合促進の触媒としての役割を有している。重合促進剤としては、例えばトリエチルアミン、n-ブチルアミンのごとき有機アミン；アセチルアセトンでキレート化したアセチルアセトンアルミニウム、チタニウムアセチルアセトナート、クロムアセチルアセトナートのごとき金属アセチルアセトナート；オクチルスズ、塩化第二錫などの錫化合物が好適に用いられる。重合促進剤の含有量は、モル比で表して、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計1モルに対して、0.0005～0.1モルであることが好ましい。また感光性組成物中の重合促進剤の含有量は0.01～10重量%であることが好ましく、さらに好ましくは0.05～10重量%である。

本発明で使用される溶媒である有機溶剤は、含有させることが好ましい成分である。前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドが加水分解するときに発生するアルコール自体が溶媒となるので特別に添加しなくてもよい場合がある。しかし、通常は、被覆の形成方法の種類によって適した溶媒が使用される。被覆の形成方法としては、キャスト法、ディップコート法、グラビアコート法、フレキソ印刷法、ロールコート法などが好適に使用される。これらのうち、キャスト法やディップコート法で用いられる有機溶剤は蒸発速度の大きな溶媒が好適である。すなわち、溶媒の蒸発速度があまりにも小さいと塗膜の乾燥が遅いので液の流動性が高くなり均一な塗膜が形成されないのであるので、例えばメタノール、エタノール、イソプロピルアルコール、tert-ブトキシアルコールなどのような蒸発速度の大きいアルコール溶媒が好適に使用できる。

一方グラビアコート法、フレキソ印刷法、ロールコート法に使用される有機溶剤は、以下に述べるような、蒸発速度の極めて小さい溶媒が好適である。その理由は蒸発速度が大きすぎる溶媒では、十分にレベリングが行われないうちに溶媒

が蒸発してしまうため塗布外観が汚くなる場合があるからである。溶媒の蒸発速度は、酢酸ブチルのそれを 100 とした相対蒸発速度指数で、一般的に評価されている。この値が 40 以下の溶媒は極めて小さい蒸発速度をもつ溶媒として分類されており、このような溶媒がグラビアコート法、フレキソ印刷法、ロールコート法の有機溶媒として好ましい。例えばエチルセロソルブ、ブチルセロソルブ、セロソルブアセテート、ジエチレングリコールモノエチルエーテル、ヘキシレングリコール、ジエチレングリコール、エチレングリコール、トリプロピレングリコール、ジアセトンアルコール、テトラヒドロフルフリルアルコール、などが挙げられる。

10 本発明に使用されるコーティング液の溶媒としては、上記のような溶媒の 1 種が望ましいが、コーティング方法やコーティング液の特性に応じて上記の溶媒を複数混合して用いても構わない。

溶媒の含有量は、モル比で表して、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計に対して 0.3 ~ 5 倍が好ましく、より好ましくは 0.5 ~ 3 倍である。感光性組成物中の溶媒含有量は 0 ~ 50 重量% であることが好ましく、さらに好ましくは 0 ~ 20 重量% である。

20 本発明における感光性組成物には、諸種の添加剤を加えてもよい。例えば膜厚みを大きくする膜厚増加剤、増粘剤、レベリング剤、フローコントロール剤などがこれらの例として挙げられる。例えば、ジメチルポリシロキサンなどのシリコーン、ポリエチレングリコールなどのグリコール類を例示できる。

25 本発明における感光性組成物は最終的には光照射によってパターン形成を行う必要があるのでパターン加工性の観点からはシロキサンポリマーを有機溶媒またはアルカリ水溶液に溶解する必要がある。従って前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの重合度を上げすぎるとリーチングしにくくなるので加水分解条件には注意が必要になってくる。アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド、加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド、および必要に応じて加水分解触媒、光反応開始剤、重合促進剤、

水および溶媒を含有する感光性組成物は、これらを配合した後に、好ましくは、室温～50℃で30分～12時間、反応させて加水分解させることにより調製される。

本発明の感光性組成物は、重量%で表して、

5	アリル基を有する金属もしくはケイ素アルコキシド	5～95.49%
	加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド	1～50%
	光反応開始剤	0.5～10%
	重合促進剤	0.01～10%
	溶媒	0～50%および
10	水	3～50%

を含むことが好ましい。

また、本発明の感光性組成物は、重量%で表して、

アリル基を有するトリアルコキシラン	5～96.49%
光反応開始剤	0.5～10%
15 重合促進剤	0.01～10%
溶媒	0～50%および
水	3～50%

を含むことが好ましい。

本発明に用いられる基材としては、平板状、曲板状、棒状等の任意の形状のものである。基材として基材表面の反り量（基材の表面方向の単位長さ当たりのその表面に垂直な方向の熱変形長さ）が小さいことが望ましい。反り量がこの範囲を越えると膜の成形過程において基板と膜が界面で剥離もしくは膜に亀裂を生じるおそれがあるので、基材の材料、寸法、形状を選ぶことが好ましい。

また、この基材は $5 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$ 以下の線膨張率を有することが好ましい。その理由は、基材の線膨張率が $5 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$ を超えると、例えばポリプロピレン（ $9 \sim 15 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$ ）のような高い熱膨張係数を有するプラスチックス基材の場合、オルガノポリシロキサン膜の成形過程において基材と膜が界面で剥離したり、膜に亀裂を生じるからである。通常の無機ガラスは $5 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$ 以下の

線膨張率を有する。また基材の少なくとも表面は酸化物であることが好ましい。その理由は、もし膜と接する基材表面が酸化物でない場合、膜の成形過程において付着強度が下がり、場合によっては基材と膜が界面で剥離を生じるからである。好ましい基材の材質の例としては、珪酸塩系ガラス、ホウ酸系ガラス、リン酸系ガラス等の酸化物ガラス；石英、セラミックス、金属、シリコン、エポキシ樹脂、ガラス繊維強化ポリスチレンなどを挙げることができる。金属はそのままでは膜が接合しないが、あらかじめ金属の表面を酸化剤で処理しておけば基材として使用することができる。このなかでも、コストの点からは、フロートガラス（線膨張係数： $1 \times 10^{-5} / ^\circ\text{C}$ ）が好ましく、熱膨張係数の点からは、石英ガラス（線膨張係数： $8 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$ ）、ゼロ膨張ガラス（線膨張係数： $-3 \sim 0.0 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$ 、商品名：ネオセラム、ゼロデュアガラス）が最も好ましい。また集積光学素子を製造する場合には、シリコン基板（線膨張係数： $41.5 \times 10^{-7} / ^\circ\text{C}$ ）を用いてもよい。

上記感光性組成物を、所定形状の基材例えば基板の上に $0.5 \mu\text{m} \sim 200 \mu\text{m}$ のウェット厚みに塗布して、塗膜を形成した後、その塗膜の上に所定の形状の光透過領域と光遮蔽領域のパターンを有するフォトマスクを配置し、そのフォトマスクを介して紫外線を、例えば、照射される位置での光強度が $1 \sim 200 \text{ mW/cm}^2$ になるように、1秒～30分間塗膜に照射して、フォトマスクの光透過領域に対応する露光塗膜部分を重合させ、フォトマスクの光遮蔽領域に対応する非露光塗膜部分をアルコールまたはアルカリ水溶液でリーチング（溶解除去）し、その後好ましくは、 $80 \sim 350^\circ\text{C}$ で10分～5時間加熱することにより硬化させて、厚みが $100 \text{ nm} \sim 50 \mu\text{m}$ 、特に好ましくは厚みが $100 \text{ nm} \sim 10 \mu\text{m}$ の、上記フォトマスクの光透過領域パターンに一致する形状のパターン膜が被覆された物品、例えば光導波路素子、回折格子その他の光学素子が形成される。

前記光照射により、非露光の塗膜部分では、アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの光重合（アリル基の重合性炭素－炭素二重結合が開いて他との結合）は生じず、溶剤によりアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドは加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの加水分解物とともに溶解除去される。露光

された塗膜部分中のアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドはその中の重合性炭素－炭素二重結合が開いて再結合することにより重合されて、溶剤に不溶となり、続く加熱処理により露光塗膜部分のアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドおよび加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドの加水分解・脱水縮合反応が完成して硬化する。

本発明の感光性組成物は上述のように、塗布膜の一部を光照射により重合硬化させた後、光未照射部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造に用いられるが、その他に、基材と種々の表面形状を有する型材との間に感光性組成物を配置し、必要に応じてプレスし、その後に全体を光照射して重合硬化させて、その型材の表面を転写された表面形状を有する膜を基材に接着した、マイクロレンズ、回折格子、光導波路などの光学素子その他の被覆物品を製造することができる。

実施例

以下に本発明を具体的に説明する。

実施例 1

15 感光性組成物の調製

ジルコニウムテトラブトキシド 7. 67 g をとり、アセト酢酸エチル 3. 39 g を加えて 0. 5 時間攪拌した。次にこれにアリルトリエトキシラン 12. 9 g を加えて 0. 5 時間攪拌した後、これに 0. 06 重量%濃度の HNO_3 水溶液 3. 6 g を加えて 3 時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、これに光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル 0. 80 g と重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム 0. 032 g を加えてさらに 2 時間攪拌し感光性組成物を調製した。

厚み 0. 5 mm で 2 cm × 2 cm の石英基板（屈折率 1. 46）をイソプロピルアルコール中で 20 分間超音波洗浄し、純水中でさらに 20 分間超音波洗浄した。これに上記感光性組成物を滴下し、スピンドルコートして組成物を前記基板上に均一に塗布した。これを 90 °C で 10 分間加熱して乾燥した。フォトマスク（2 cm × 2 cm の大きさでその中央に長さ 2 cm で幅が 15 μm の細長い紫外光透過部を 20 μm の間隔を隔てて平行に 2 本設けてあり、その他の部分は紫外線

を遮蔽する。) を塗布膜面に乗せ、これを窒素雰囲気下に置き、30 cm上方の距離から5 eV (波長365 nm) の紫外線を10分間照射した。膜面における紫外線の強度は10 mW/cm²であった。この照射により、膜中の露光部分(前記紫外光透過部に対応する部分)では、アリルトリエトキシシランのアリル基が有する重合性炭素-炭素二重結合が開いてアリルトリエトキシシランの重合体(イソプロピルアルコールに非溶解)が生成された。しかし非露光部分(前記紫外遮蔽部に対応する部分)ではそのような重合体は生成されずイソプロピルアルコールに溶解性を有した。露光終了後、基板をイソプロピルアルコール中に浸漬して洗って膜の非露光部分を溶解して除去した。150°Cで1時間加熱、乾燥することにより、アリルトリエトキシシランおよびジルコニウムテトラブトキシドの加水分解・脱水縮重合反応が完成して、石英基板上にそれぞれ、幅15 μm、高さ12 μmで長さ2 cmの2本の導波路コア(屈折率1.47)が20 μmの間隔を隔てて平行に配置されたリッジ型光導波路を得た。SEM(走査型電子顕微鏡)観察の結果、2つの導波路コアの間の石英基板部分には非露光部分残留物が全く観察されず、紫外線非露光部分のリーチングがきれいに行われたことがわかった。

比較例 1

上記実施例1の感光性組成物の調製において使用したアリルトリエトキシラン12.9 gに代えてトリメトキシシリルプロピルメタクリレート10 gを使用する他は実施例1と同様のモル比にて感光性組成物を調製した。

上記感光性組成物を、上記実施例1と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去および加熱を行ってリッジ型光導波路を得た。導波路コア(屈折率1.47)の寸法は幅15 μm、高さ12 μmであった。SEM(走査型電子顕微鏡)観察の結果、2つの導波路コアの間の石英基板部分には非露光部分残留物が石英基板部分の面積の約5%の広さで残っていることが観察された。

実施例 2

感光性組成物の調製

アリルトリメトキシシラン16.2 gに0.06重量%濃度のHNO₃水溶液3.

6 g を加えて 3 時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル 0.8 g と重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム 0.32 g を加えてさらに 1 時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

- 5 上記感光性組成物を用い、上記実施例 1 で非露光部分除去でのイソプロピルアルコールに代えて濃度 5 重量% の NaOH 水溶液を用いた他は上記実施例 1 と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行つてリッジ型光導波路を得た。導波路コア（屈折率 1.465）の寸法は幅 15 μm、高さ 13 μm であった。SEM（走査型電子顕微鏡）観察の結果、2 つの導波路コアの間の石英基板部分には非露光部分残留物が全く観察されなかった。
- 10

実施例 3

感光性組成物の調製

- アリルトリエトキシシラン 16.2 g に、テトラエトキシシラン 8.3 g を加え、それに 0.06 重量% 濃度の HNO₃ 水溶液 3.6 g を加えて 3 時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル 0.08 g と重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム 0.03 g を加えてさらに 1 時間攪拌し感光性組成物を調製した。

- 上記感光性組成物を用い、実施例 2 で用いたフォトマスクの代わりにフォトマスク（2 cm × 2 cm の大きさで、幅 10 μm、長さ 2 cm で、間隔が 10 μm のストライプ状の紫外光透過部を約 1,000 個平行に設けた）を用いた他は、上記実施例 2 と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行つて回折格子を得た。回折格子の各凸部の寸法は幅 10 μm、長さ 2 cm、高さ 10 μm であった。He-Ne レーザより発振する 632.8 nm のビームを用いて回折の状態を観察したところ、1 次回折光および 2 次回折光がともにきれいに観察された。また SEM（走査型電子顕微鏡）観察の結果、回折格子各凸部の間の石英基板部分には非露光部分残留物が全く観察されなかった。

比較例 2

上記比較例 1 で調製した感光性組成物を用いて、上記実施例 3 と同様にして、

石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って、実施例3とほぼ同一寸法の回折格子を得た。He-Neレーザより発振する632.8nmのビームを用いて回折の状態を観察したところ、規則正しい回折光として観察されなかった。またSEM(走査型電子顕微鏡)観察の結果、回折格子各凸部の間の石英基板部分には非露光部分残留物が、石英基板部分の面積の約5%にわたって所々に観察された。

比較例3

トリメトキシシリルプロピルメタクリレート24.8gに0.06重量%HNO₃水溶液3.6gを加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.8gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

上記感光性組成物をディップコーティング法により石英基板上に塗布したが、風乾している間に基板上のゾルが島状や液滴状に凝集し、平滑な塗膜として得られなかった。

比較例4

トリメトキシシリルプロピルメタクリレート19.8gにテトラエトキシシラン4.17g、0.06重量%HNO₃水溶液3.6gを加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.80gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

上記感光性組成物をディップコーティング法により石英基板上に塗布した後、実施例3と同様に紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って回折格子を作製した。SEM観察で非露光部分に残留物が観察され、He-Neレーザーの632.8nmのビームを試料に照射して回折光を観察したところ明瞭な回折光は観察されず、光はぼやけたり、回折光同士がつながったりというような状況であった。

比較例5

ビニルトリエトキシシラン19.3gに0.06重量%HNO₃水溶液3.6g

を加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.8gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

5 上記感光性組成物を用い、上記実施例3と同様にして、石英基板上に塗布、乾燥、紫外線照射した。紫外線照射が終わった塗膜をイソプロピルアルコールでリーンスすると、非露光部のみならず露光部もリーチングされてしまい、光照射しても重合しなかった。

比較例6

10 ビニルトリエトキシシラン15.2gにテトラエトキシシラン4.17g、0.06重量%HNO₃水溶液3.6gを加えて3時間、溶液が均一になるまで攪拌した。その後、光反応開始剤のベンゾインイソブチルエーテル0.80gと重合促進剤であるアセチルアセトンアルミニウム0.32gを加えてさらに1時間攪拌することにより感光性組成物を調製した。

15 上記感光性組成物をディップコーティング法により石英基板上に塗布した後、実施例3と同様に、マスキング、紫外線照射、非露光部分除去、加熱を行って回折格子を作製した。SEM観察で露光部分以外でも膜がリーチングされているのが観察され、きれいなストライプ状のパターンは得られなかった。He-Neレーザーの632.8nmのビームを試料に照射して回折光を観察したところ明瞭な回折光は観察されず、光はぼやけたり、回折光同士がつながったりというような状況であった。

20 以上のとおり、本発明によれば、感光性組成物を基板に塗布し、所定のパターンのフォトマスクを介して光照射した後、非露光部を有機溶媒またはアルカリ水溶液などでリーチングすれば、露光部と非露光部の境界がはっきりした精度に優れた微細パターン膜が得られ、従って耐熱性、耐水性、耐薬品性等の特性が高い、光導波路、回折格子などの光学素子として用いられるパターン膜被覆物品が得られる。

請求の範囲

1. 感光性を有する有機金属もしくはケイ素化合物および加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去するパターン膜被覆物品の製造方法において、前記有機金属もしくはケイ素化合物はアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドであることを特徴とするパターン膜被覆物品の製造方法。
5
2. 前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドはアリルトリメトキシランまたはアリルトリエトキシシランである請求項1に記載の方法。
10
3. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、ケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを含む請求項1または2に記載の方法。
15
4. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、ケイ素のテトラーもしくはトリーアルコキシド、チタンのテトラーもしくはトリーアルコキシド、ジルコニウムのテトラーもしくはトリーアルコキシドまたはアルミニウムのトリアルコキシドを含む請求項1～3のいずれかに記載の方法。
20
5. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、テトラエトキシシラン、テトラメトキシシラン、トリプトキシアルミニウム、テトラプロポキシジルコニウム、テラブトキシジルコニウム、テライソプロポキシチタン、テラブトキシチタン、メチルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシランおよびフェニルトリメトキシシランからなる群より選ばれる少なくとも1種のアルコキシドを含む請求項1～4のいずれかに記載の方法。
25
6. 前記感光性組成物は、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドお

より前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド100重量部に対して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを1～50重量部含有する請求項1～5のいずれかに記載の方法。

5

7. 前記感光性組成物は、さらに光反応開始剤を、前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド1モルに対して、0.001～0.2モルの割合で含有する請求項1～6のいずれかに記載の方法。

10 8. 前記感光性組成物は、さらに重合促進剤を、モル比で表して、前記金属もしくはケイ素アルコキシドおよび前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計1モルに対して、0.0005～0.1モルの割合で含有する請求項1～7のいずれかに記載の方法。

15 9. 前記感光性組成物は、さらに水を、モル比で表して、前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドおよび感光性を有するアリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドの合計に対して1～20倍の割合で含有する請求項1～8のいずれかに記載の方法。

20 10. 前記感光性組成物は、重量%で表して、
アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド 5～95.49%,
加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド 1～50%,
光反応開始剤 0.5～10%,
重合促進剤 0.01～10%,
25 溶媒 0～50%および
水 3～50%
を含む請求項1～9のいずれかに記載の方法。

11. アリル基を有するトリアルコキシランを含む感光性組成物を基材上に塗布し、光照射して塗布膜の露光部を重合させ、次いで非露光部を溶解して除去することを特徴とするパターン膜被覆物品の製造方法。
- 5 12. 前記アリル基を有するトリアルコキシランはアリルトリメトキシランまたはアリルトリエトキシランである請求項11に記載の方法。
13. 前記感光性組成物は、さらに光反応開始剤を、前記アリル基含有トリアルコキシラン1モルに対して、0.001～0.2モルの割合で含有する請求項
10 11または12に記載の方法。
14. 前記感光性組成物は、さらに重合促進剤を、モル比で表して、前記アリル基含有トリアルコキシラン1モルに対して、0.0005～0.1モルの割合で含有する請求項11～13のいずれかに記載の方法。
15
15. 前記感光性組成物は、さらに水を、モル比で表して、前記アリル基含有トリアルコキシランに対して1～20倍の割合で含有する請求項11～14のいずれかに記載の方法。
- 20 16. 前記感光性組成物は、重量%で表して、
アリル基を有するトリアルコキシラン 5～96.49%、
光反応開始剤 0.5～10%，
重合促進剤 0.01～10%，
溶媒 0～50%および
25 水 3～50%
を含む請求項11～15のいずれかに記載の方法。
17. 前記パターン膜被覆物品が光導波路、回折格子またはマイクロレンズであ

る請求項 1 ~ 1 6 のいずれかに記載の方法。

18. アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド、光反応開始剤、重合促進剤および水を主成分とする感光性組成物。

5

19. さらに、加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドを含む請求項 18 に記載の感光性組成物。

20. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、ケイ素のアルコキシド、チタンのアルコキシド、ジルコニウムのアルコキシドまたはアルミニウムのアルコキシドを含む請求項 19 に記載の感光性組成物。

21. 前記加水分解性金属アルコキシドは、ケイ素のテトラーもしくはトリーアルコキシド、チタンのテトラーもしくはトリーアルコキシド、ジルコニウムのテトラーもしくはトリーアルコキシドまたはアルミニウムのトリアルコキシドを含む請求項 19 に記載の感光性組成物。

22. 前記加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシドは、テトラエトキシシリソ、テトラメトキシシリソ、トリブトキシアルミニウム、テトラプロポキシジルコニウム、テトラブロキシジルコニウム、テトライソプロポキシチタン、テトラブロキシチタン、メチルトリエトキシシリソ、メチルトリメトキシシリソ、フェニルトリエトキシリソおよびフェニルトリメトキシリソからなる群より選ばれる少なくとも 1 種のアルコキシドを含む請求項 19 に記載の感光性組成物。

23. 前記アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシドがアリルトリアルコキシリソである請求項 18 ~ 22 のいずれかに記載の感光性組成物。

24. 前記アリルトリアルコキシリソがアリルトリメトキシリソまたはアリ

ルトリエトキシシランである請求項 23 に記載の感光性組成物。

25. 上記感光性組成物が、重量%で表して、

アリルトリアルコキシシラン	5～96. 49 %,
5 光反応開始剤	0. 5～10 %,
重合促進剤	0. 01～10 %,
溶媒	0～50 % および
水	3～30 %

を含む請求項 23 に記載の感光性組成物。

10

26. 上記感光性組成物が、重量%で表して、

アリル基含有金属もしくはケイ素アルコキシド	5～95. 49 ,
加水分解性金属もしくはケイ素アルコキシド	1～50 %,
光反応開始剤	0. 5～10 %,
15 重合促進剤	0. 01～10 %,
溶媒	0～50 % および
水	3～50 %

を含む請求項 18～24 のいずれかに記載の感光性組成物。

20 27. 上記感光性組成物が、さらに酸触媒を 0. 00002～10 重量% 含む請求項 18～26 のいずれかに記載の感光性組成物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09382

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 Int.Cl⁷ G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
 G02B5/18, G02B3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
 Int.Cl⁷ G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
 G02B5/18, G02B3/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP, 965885, A (Kansai Research Institute), 22 December, 1999 (22.12.99) & US, 6183935, A & WO, 9935536, A & JP, 11-194491, A	1-27
Y	JP, 11-338145, A (Fujifilm Olin Co., Ltd.), 10 December, 1999 (10.12.99), Par. Nos. [0044] to [0047] (Family: none)	1-27
Y	JP, 6-148880, A (Nippon Sheet Glass Company, Limited), 27 May, 1994 (27.05.94), Par. No. [0014] (Family: none)	1-27
Y	EP, 938027, A (Lucent Technologies Inc.), 25 August, 1999 (25.08.99) & JP, 11-344917, A	1-27
Y	US, 5271797, A (Rohm Co., Ltd.), 21 December, 1993 (21.12.93) & JP, 5-116454, A	1-27

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
03 April, 2001 (03.04.01)

Date of mailing of the international search report
17 April, 2001 (17.04.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/09382

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-305030, A (Nissan Chemical Industries, Ltd.), 21 November, 1995 (21.11.95), Par. Nos. [0011] to [0015] (Family: none)	1-27

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C1' G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C1' G03F7/075, G03F7/027, C08L83/04, C08L85/00,
G02B5/18, G02B3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP, 965885, A (Kansai Research Institute)、22. 12月. 1999 (22. 12. 99)、 &US, 6183935, A&WO, 9935536, A&JP, 11-194491, A	1-27
Y	JP, 11-338145, A (富士フィルムオーリン株式会 社)、10. 12月. 1999 (10. 12. 99)、 【0044】-【0047】、(ファミリーなし)	1-27

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

03. 04. 01

国際調査報告の発送日

17.04.01

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

前田 佳与子

2M 9019

電話番号 03-3581-1101 内線 3273

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/09382

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 6-148880, A (日本板硝子株式会社)、 27. 5月. 1994 (27. 05. 94)、【0014】、(ファミリーなし)	1-27
Y	E P, 938027, A (Lucent Technologies Inc.)、 25. 8月. 1999 (25. 08. 99)、& J P, 11-34 4917, A	1-27
Y	U S, 5271797, A (Rohm Co., Ltd.)、21. 12月. 1 993 (21. 12. 93)、& J P, 5-116454, A	1-27
Y	J P, 7-305030, A (日産化学工業株式会社)、 21. 11月. 1995 (21. 11. 95)、 【0011】-【0015】、(ファミリーなし)	1-27

CLAIMS

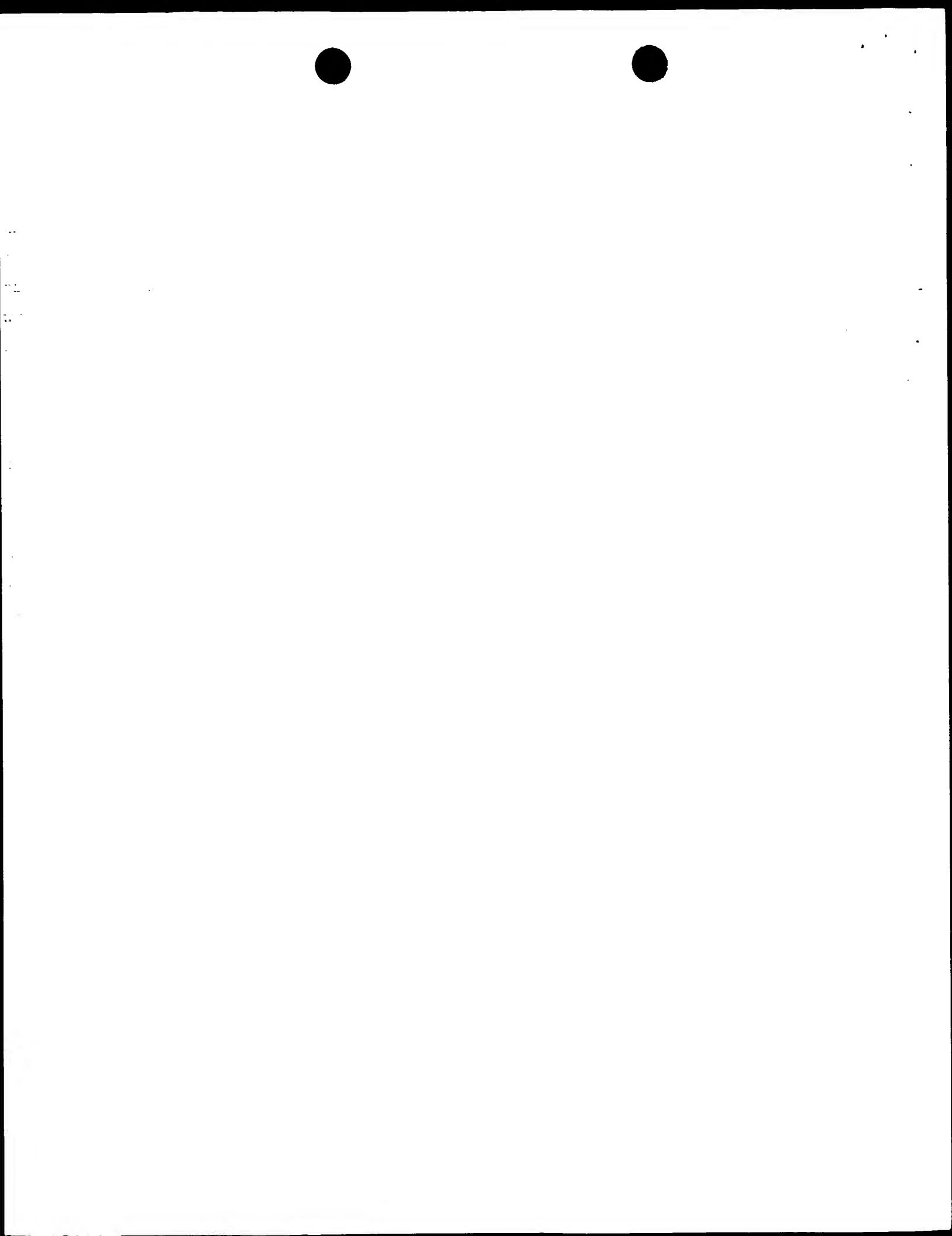
1. A method for producing a pattern film-coated article which comprises the steps of coating a photosensitive composition comprising an organometallic or organosilicon compound having photosensitivity and a hydrolyzable metal or silicon alkoxide on a substrate, irradiating the coated film on the substrate with light to polymerize the exposed portions of the coated film and then dissolving unexposed portions of the coated film to remove them, wherein the organometallic or organosilicon compound is an allyl group-containing metal or silicon alkoxide.
2. The method of claim 1, wherein the allyl group-containing metal or silicon alkoxide is allyltrimethoxysilane or allyltriethoxysilane.
3. The method of claim 1 ~~or 2~~, wherein the hydrolyzable metal or silicon alkoxide includes a silicon alkoxide, a titanium alkoxide, a zirconium alkoxide or an aluminum alkoxide.
4. The method of ~~any one of claims~~ 1 to ~~3~~, wherein the hydrolyzable metal or silicon alkoxide includes a silicon tetra- or tri-alkoxide, a titanium tetra- or tri-alkoxide, a zirconium tetra- or tri-alkoxide or an aluminum trialkoxide.
5. The method of ~~any one of claims~~ 1 to ~~4~~, wherein the hydrolyzable metal or silicon alkoxide includes at least one alkoxide selected from the group consisting of tetraethoxysilane, tetramethoxysilane, tributoxyaluminum, tetrapropoxyzirconium, tetrabutoxyzirconium, tetraisopropoxytitanium, tetrabutoxytitanium,

Version 1.0

Sample Configuration

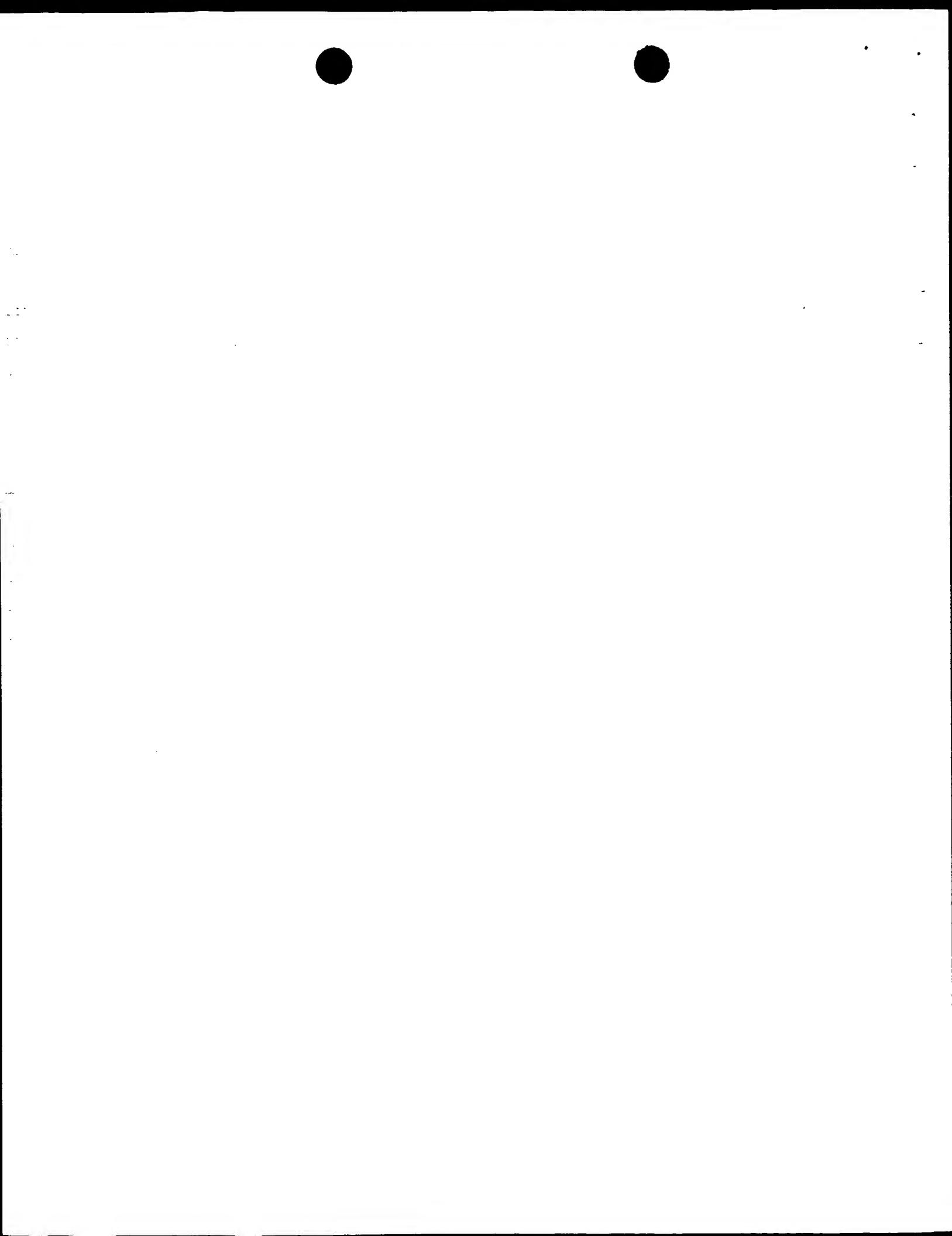
methyltriethoxysilane, methyltrimethoxysilane,
phenyltriethoxysilane and phenyltrimethoxysilane.

6. The method of any one of claims 1 to ~~5~~, wherein the
photosensitive composition contains the hydrolyzable metal
or silicon alkoxide in an amount of 1 to 50 parts by weight
based on 100 parts by weight of the allyl group-containing
metal or silicon alkoxide.
- 10 7. The method of any one of claims 1 to ~~6~~, wherein the
photosensitive composition further contains a photoreaction
initiator in a proportion of 0.001 to 0.2 moles per mole of
the allyl group-containing metal or silicon alkoxide.
- 15 8. The method of any one of claims 1 to ~~7~~, wherein the
photosensitive composition further contains a
polymerization promoter in a proportion of 0.0005 to 0.1 mole
per mole of the total of the metal or silicon alkoxide and
the allyl group-containing metal or silicon alkoxide.
- 20 9. The method of any one of claims 1 to ~~8~~, wherein the
photosensitive composition further contains water in a molar
proportion which is 1 to 20 times as much as the total of
the hydrolyzable metal or silicon alkoxide and the allyl
group-containing metal or silicon alkoxide having
photosensitivity.
10. The method of any one of claims 1 to ~~9~~, wherein the
photosensitive composition contains 5 to 95.49% by weight
30 of the allyl group-containing metal or silicon alkoxide, 1
to 50% by weight of the hydrolyzable metal or silicon alkoxide,
0.5 to 10% by weight of the photoreaction initiator, 0.01
to 10% by weight of the polymerization promoter, 0 to 50%
by weight of a solvent and 3 to 50% by weight of water.



11. A method for producing a pattern film-coated article which comprises the steps of coating a photosensitive composition containing an allyl group-containing trialkoxysilane on a substrate, irradiating the coated film on the substrate with light to polymerize the exposed portions of the coated film and then dissolving unexposed portions of the coated film to remove them.
- 10 12. The method of claim 11, wherein the allyl group-containing trialkoxysilane is allyltrimethoxysilane or allyltriethoxysilane.
- 15 13. The method of claim 11 ~~or 12~~, wherein the photosensitive composition further contains a photoreaction initiator in a proportion of 0.001 to 0.2 moles per mole of the allyl group-containing trialkoxysilane.
- 20 14. The method of ~~any one of claims 11 to 13~~, wherein the photosensitive composition further contains a polymerization promoter in a proportion of 0.0005 to 0.1 mole per mole of the allyl group-containing trialkoxysilane.
- 25 15. The method of ~~any one of claims 11 to 14~~, wherein the photosensitive composition further contains water in a molar proportion which is 1 to 20 times as much as the allyl group-containing trialkoxysilane.
- 30 16. The method of ~~any one of claims 11 to 15~~, wherein the photosensitive composition contains 5 to 96.49% by weight of the allyl group-containing trialkoxysilane, 0.5 to 10% by weight of the photoreaction initiator, 0.01 to 10% by weight of the polymerization promoter, 0 to 50% by weight of a solvent and 3 to 50% by weight of water.

TOP SECRET EYES ONLY



17. The method of any one of claims 1 to 16, wherein the pattern film-coated article is an optical waveguide, diffraction grating or microlens.

5

18. A photosensitive composition comprising an allyl group-containing metal or silicon alkoxide, a photoreaction initiator, a polymerization promoter and water as main components.

10

19. The photosensitive composition of claim 18, which further contains a hydrolyzable metal or silicon alkoxide.

15

20. The photosensitive composition of claim 19, wherein the hydrolyzable metal or silicon alkoxide includes a silicon alkoxide, a titanium alkoxide, a zirconium alkoxide or an aluminum alkoxide.

20

21. The photosensitive composition of claims 19, wherein the hydrolyzable metal alkoxide includes a silicon tetra- or tri-alkoxide, a titanium tetra- or tri-alkoxide, a zirconium tetra- or tri-alkoxide or an aluminum trialkoxide.

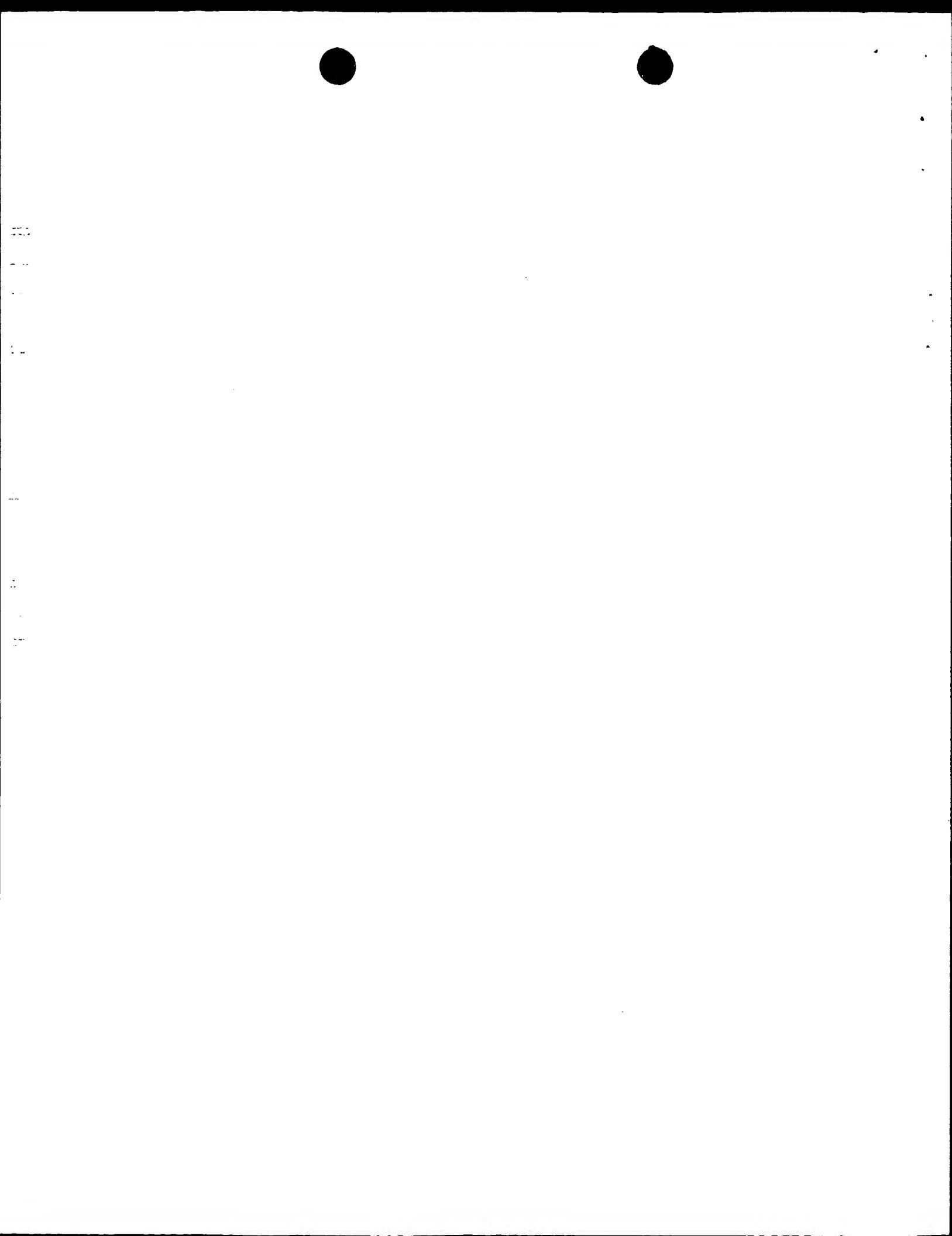
25

22. The photosensitive composition of claims 19, wherein the hydrolyzable metal or silicon alkoxide includes at least one alkoxide selected from the group consisting of tetraethoxysilane, tetramethoxysilane, tributoxyaluminum, tetrapropoxysirconium, tetrabutoxyzirconium, tetraisopropoxytitanium, tetrabutoxytitanium, methyltriethoxysilane, methyltrimethoxysilane, phenyltriethoxysilane and phenyltrimethoxysilane.

30

23. The photosensitive composition of any one of claims 18 to 22, wherein the allyl group-containing metal or silicon

TOEATTEED-EETEE9EE60



alkoxide is allyltrialkoxysilane.

24. The photosensitive composition of claim 23, wherein the
allyltrialkoxysilane is allyltrimethoxysilane or

5 allyltriethoxysilane.

25. The composition of claim 23, wherein the photosensitive
composition contains 5 to 96.49% by weight of
allyltrialkoxysilane, 0.5 to 10% by weight of the
photoreaction initiator, 0.01 to 10% by weight of the
polymerization promoter, 0 to 50% by weight of a solvent and
3 to 30% by weight of water.

26. The composition of ~~any one of claims~~ 18 to ~~24~~, wherein
15 the photosensitive composition contains 5 to 95.49% by weight
of the allyl group-containing metal or silicon alkoxide, 1
to 50% by weight of the hydrolyzable metal or silicon alkoxide,
0.5 to 10% by weight of the photoreaction initiator, 0.01
to 10% by weight of the polymerization promoter, 0 to 50%
20 by weight of a solvent and 3 to 50% by weight of water.

27. The composition of ~~any one of claims~~ 18 to ~~26~~, wherein
the photosensitive composition further contains an acid
catalyst in an amount of 0.00002 to 10% by weight.

